

# Influence de la vitesse de refroidissement sur l'évolution de la macroségrégation dans les lingots de grande taille

par

Gary BRIONNE

MÉMOIRE PRÉSENTÉ À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE  
COMME EXIGENCE PARTIELLE À L'OBTENTION DE  
LA MAÎTRISE AVEC MÉMOIRE EN GENIE MÉCANIQUE  
M. Sc. A.

MONTREAL, LE 24 AOÛT 2018

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE  
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC



Gary Brionne, 2018



Cette licence [Creative Commons](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/) signifie qu'il est permis de diffuser, d'imprimer ou de sauvegarder sur un autre support une partie ou la totalité de cette œuvre à condition de mentionner l'auteur, que ces utilisations soient faites à des fins non commerciales et que le contenu de l'œuvre n'ait pas été modifié.

**PRÉSENTATION DU JURY**  
**CE MÉMOIRE A ÉTÉ ÉVALUÉ**  
**PAR UN JURY COMPOSÉ DE :**

M. Mohammad Jahazi, directeur de mémoire  
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Henri Champlaud, président du jury  
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Victor Songmene, membre du jury  
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

**IL A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC**

**LE 14 AOÛT 2018**

**À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE**



## **REMERCIEMENTS**

La réalisation de ce travail n'aurait pas été possible sans l'aide de l'équipe CM2P encadrée par M. Mohammad Jahazi, que je remercie pour son support, son écoute et sa passion pour la mécanique. Ensuite, je tiens à remercier l'équipe encadrante du projet d'amélioration des procédés de coulée des lingots de grande taille, Mme Chunping Zhang et M. Abdelhalim Loucif qui ont su apporter leur savoir-faire ainsi que leur esprit critique que cela soit pour l'analyse des résultats expérimentaux ou numériques.

Des remerciements s'adressent également au partenaire industriel, Finkl Steel (Sorel). Ces derniers sont destinés tout particulièrement à M. Jean-Benoît Morin et Mme Haikouhi Melkonyan qui ont pu m'accueillir lors d'un stage durant l'été 2017, ce qui a permis d'améliorer mes connaissances sur le procédé et d'avoir un meilleur recul par rapport aux résultats. Merci également à l'équipe de l'aciérie et de la forge qui ont su me faire profiter de leur expérience dans leur métier.

J'aimerais également remercier Jean-Benoît Lévesque pour nous avoir aidés à réaliser les essais DSC à l'Institut de Recherche d'Hydro-Québec. Son soutien a été d'une grande aide pour l'obtention des résultats concernant l'analyse thermique.

Finalement, j'aimerais remercier tous les membres de l'équipe du CM2P pour leurs aptitudes complémentaires qui ont su m'apporter un recul sur les différents résultats obtenus.



# **INFLUENCE DE LA VITESSE DE REFROIDISSEMENT SUR L'ÉVOLUTION DE LA MACROSÉGRÉGATION DANS LES LINGOTS DE GRANDE TAILLE**

Gary BRIONNE

## **RÉSUMÉ**

Les lingots de grande taille (40 t) sont l'objet d'une hétérogénéité chimique appelée macroségrégation. Celle-ci doit être considérée et identifiée afin d'avoir une meilleure connaissance des propriétés mécaniques au sein du lingot et de certifier la qualité. L'identification expérimentale de la macroségrégation exige énormément de ressources en termes de temps et de coût, ce qui encourage le développement d'outils numériques permettant de prédire les cartes de macroségrégation des lingots de grande taille. Cependant, la bonne prédiction de ces techniques numériques dépend des propriétés du matériau.

Dans le cadre d'un partenariat de recherche avec Finkl Steel (Sorel), un projet d'amélioration de la prédiction de la macroségrégation dans les lingots de grande taille a été mis en place. Ces améliorations ont pour objectif de considérer la cinétique de refroidissement sur les paramètres étudiés (températures de transition de phase et espace interdendritique secondaire (SDAS)). Ainsi deux méthodologies permettant de mesurer expérimentalement ces paramètres en fonction de la cinétique de solidification sont mises en place. Une analyse microstructurale à l'aide d'un microscope optique bifocal AmScope et une analyse thermique grâce à une DSC Netsch 404 (températures de transition de phase) ont été élaborées. Puis, deux modèles numériques ont été développés, un modèle de solidification unidirectionnelle et un modèle d'un lingot 40 t. Cela, dans le but d'observer l'influence de l'adaptation de ces paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement sur la macroségrégation.

Des résultats expérimentaux ont permis de développer une loi de comportement des SDAS en fonction des vitesses de refroidissement lors de la solidification. Puis le comportement des températures de transition a été mesuré montrant que leurs variations sont négligeables pour l'ordre de grandeur des vitesses de refroidissement dans les lingots de grande taille. Pour la partie numérique, le modèle de solidification unidirectionnelle a permis de montrer que l'adaptation des SDAS en fonction de la vitesse de refroidissement a une influence faible sur la macroségrégation pour des SDAS entre 50 et 350  $\mu\text{m}$ . Enfin, des méthodes d'amélioration du logiciel Thercast® ont été illustrées afin de simuler au mieux la macroségrégation dans les lingots de grande taille.

**Mots-clés :** lingot de grande taille, acier faiblement allié, macroségrégation, vitesse de refroidissement





# **INFLUENCE OF THE COOLING RATE ON MACROSEGREGATION EVOLUTION IN LARGE-SIZE INGOTS**

Gary BRIONNE

## **ABSTRACT**

Large-size ingots (40-ton) are exposed to chemical heterogeneities after solidification called macrosegregation. Such heterogeneities have to be considered and monitored in order to better predict the evolution of mechanical properties and insure the required high quality of the products. The experimental identification of macrosegregation is cost and time-consuming, fostering the use of numerical tools such as FEM software for the prediction of macrosegregation patterns in large-size ingots. However, a proper prediction requires accurate material properties as input parameters.

As part of a partnership with Finkl Steel (Sorel), a research project was carried out to improve macrosegregation prediction in large-size ingots. Such improvements are based on considering the influence of cooling rate on transition temperature and secondary dendritic arm spacing (SDAS). Hence, two experimental methodologies were developed to measure the behaviour of such parameters with cooling rates during solidification. A thermal analysis with a Netsch 404 and a microstructural analysis with a bifocal microscope were carried out. Two numerical FEM models were developed and implemented in the FEM software, TherCast. The first one simulates unidirectional solidification and the second one predicts macrosegregation in a 40-ton ingot. Both were used to analyse the influence of adaptive parameters as a function of the cooling rate on macrosegregation patterns.

Experimental results were used to develop a relation describing SDAS evolution as a function of cooling rate during solidification. Then, the behaviour of the transition temperatures was measured emphasizing an insignificant variation with the order of magnitude of the range of cooling rates. Concerning the numerical analyses, the unidirectional solidification model showed a negligible impact of adaptive SDAS (between 50 and 350  $\mu\text{m}$ ) on macrosegregation patterns. Finally, some recommendations were developed to simulate macrosegregation in the large-size ingots.

**Keywords :** large size ingots, low-alloyed steel, macrosegregation, cooling rates



## TABLE DES MATIÈRES

	Page
INTRODUCTION .....	1
CHAPITRE 1    Revue de littérature .....	3
1.1    Introduction.....	3
1.2    Coulée des lingots d'aciers de grande taille.....	4
1.2.1    Cycle de fabrication et étapes de l'aciérie .....	4
1.2.2    Hétérogénéités dues aux vitesses de refroidissement dans un lingot de grande taille.....	8
1.3    Macroségrégation.....	8
1.3.1    Macroségrégation dans les lingots de grande taille .....	8
1.3.1.1    Mécanismes principaux .....	9
1.3.1.2    Hypothèses supplémentaires.....	15
1.3.2    Techniques de mesures de la macroségrégation .....	17
1.3.3    Microségrégation .....	20
1.3.3.1    Dendrites et surfusion .....	21
1.3.3.2    Morphologie des grains.....	23
1.3.3.3    Chimie.....	23
1.3.3.4    Séquences de solidification.....	25
1.3.3.5    Vitesse de refroidissement .....	27
1.4    Modélisation numérique de la macroségrégation dans les lingots de grande taille.....	27
1.4.1    Modèles macroscopiques .....	28
1.4.1.1    Modèles thermique et thermomécanique .....	28
1.4.1.2    Modèles de macroségrégation.....	29
1.4.1.3    Paramètres du matériau.....	33
1.4.2    Modèles microscopiques complémentaires .....	34
1.4.2.1    Microségrégation .....	34
1.4.2.2    Perméabilité .....	38
1.4.3    Stratégie de résolution des modèles.....	39
1.5    Étude des paramètres caractéristiques du matériau lors de la solidification d'un acier faiblement allié .....	39
1.5.1    Étude de l'évolution des paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement.....	39
1.5.1.1    SDAS .....	40
1.5.1.2    Liquidus, solidus et chaleur latente de fusion.....	44
1.5.1.3    Enthalpie de transformation (Chaleur latente).....	49
1.5.2    Justification et choix des paramètres étudiés .....	50
1.5.3    Appareils et techniques de mesure des paramètres.....	50
1.5.3.1    Attaque chimique .....	51
1.5.3.2    Microsonde de Castaing.....	51
1.5.3.3    Analyse thermique DSC/DTA/TGA.....	52

CHAPITRE 2	Méthodes expérimentales et numériques .....	55
2.1	Objectifs .....	55
2.2	Paramètres étudiés .....	55
2.2.1	Algorithmes de simulation de macroségrégation sur Thercast® .....	55
2.2.2	Liste des paramètres considérés .....	56
2.2.3	Problématique des simulations enchainées .....	58
2.3	Exploitation des lingots industriels .....	59
2.3.1	Échantillonnage des deux ressources expérimentales .....	59
2.3.2	Échantillons et paramètres étudiés .....	62
2.3.2.1	Choix des échantillons pour l'étude de l'espace interdendritique secondaire .....	62
2.3.2.2	Choix des échantillons pour l'étude des températures de transition (Liquidus et Solidus) .....	64
2.3.3	Appareils et méthodes de mesures utilisés .....	66
2.3.3.1	Espace interdendritique secondaire .....	66
2.3.3.2	Analyse thermique .....	68
2.4	Modèle numérique de solidification unidirectionnelle .....	70
2.4.1	Géométrie et conditions aux limites .....	71
2.4.2	Maillage .....	72
2.4.2.1	Gradient de fraction liquide .....	74
2.4.2.2	Gradient de vitesse .....	75
2.4.2.3	Gradient du taux de macroségrégation du carbone .....	76
2.4.3	Adaptation des paramètres par rapport à la vitesse de refroidissement .....	78
2.5	Modèle numérique du lingot de 40 t .....	81
2.5.1	Géométrie et conditions aux limites .....	82
2.5.2	Maillage .....	83
2.5.2.1	Gradient de fraction liquide .....	83
2.5.2.2	Gradient de vitesse .....	84
2.5.2.3	Gradient du taux de macroségrégation du carbone .....	85
2.5.3	Adaptation des paramètres par rapport à la vitesse de refroidissement .....	86
2.6	Conclusion partielle .....	87
CHAPITRE 3	Résultats et discussions .....	89
3.1	Objectifs .....	89
3.2	Champs des vitesses de refroidissement dans un lingot de 40 t .....	89
3.3	Estimation numérique des paramètres des matériaux .....	92
3.3.1	Estimation de paramètres à l'équilibre .....	93
3.3.1.1	Comparaison des logiciels .....	93
3.3.1.2	Comparaison des propriétés des différents alliages .....	95
3.3.2	Estimation de paramètres au para-équilibre .....	99
3.4	Analyse de la morphologie et dimensionnelle des dendrites .....	100
3.4.1.1	Espaces interdendritiques dans la masselotte d'un lingot de 40 t .....	101

	3.4.1.2	Comportement de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la vitesse de refroidissement.....	105
3.5		Analyse thermique .....	110
	3.5.1	Calibration.....	111
	3.5.2	Composition nominale .....	113
	3.5.2.1	Répétabilité .....	113
	3.5.2.2	Liquidus et Solidus .....	115
	3.5.2.3	Capacité calorifique massique .....	117
	3.5.2.4	Enthalpie .....	118
	3.5.2.5	Effet de la vitesse de refroidissement sur le liquidus, solidus et intervalle de solidification .....	119
	3.5.3	Composition macroségrégée.....	120
3.6		Influence des paramètres adaptatifs sur la macroségrégation.....	123
	3.6.1	Modèle de solidification unidirectionnelle .....	123
	3.6.1.1	Influence de la vitesse de refroidissement sur les SDAS et la macroségrégation .....	124
	3.6.1.2	Comparaison entre les deux algorithmes (thermomécanique et thermohydraulique).....	126
	3.6.1.3	Influence de l'espace interdendritique secondaire adaptatif sur la macroségrégation .....	130
	3.6.2	Lingot de 40 t.....	132
3.7		Conclusion partielle .....	134
		CONCLUSION.....	137
		RECOMMANDATIONS .....	139
ANNEXE I		THERCAST® : Algorithme thermohydraulique et thermomécanique .....	141
ANNEXE II		THERCAST® : Modèle de macroségrégation utilisé .....	143
ANNEXE III		THERCAST® : Modèle mécanique .....	145
ANNEXE IV		DSC : Calibration.....	147
ANNEXE V		Taux de macroségrégation du carbone le lingot après forgeage et traitement thermique .....	148
ANNEXE VI		Article : “3D FEM simulation of the effect of cooling rate on SDAS and macrosegregation of a high strength steel” .....	149
		BIBLIOGRAPHIE.....	157



## LISTE DES TABLEAUX

	Page
Tableau 1.1 Exemple des caractéristiques données à du métal.....	34
Tableau 1.2 Comparaison des liquidus et solidus extrapolés à partir des mesures DSC et calculés par le logiciel JMatPro® de l'alliage FeCrVC en équilibre (Bleckmann et al., 2015) .....	49
Tableau 2.1 Fichier principal Thercast® regroupant les paramètres thermiques et thermomécaniques.....	57
Tableau 2.2 Fichier secondaire Thercast® regroupant les paramètres complémentaires de macroségrégation .....	58
Tableau 2.3 Composition nominale de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (m. %). ....	64
Tableau 2.4 Composition nominale (Composition 1, réf. 3DC3T).....	65
Tableau 2.5 Moyennes et dispersions statistiques de la concentration des éléments d'addition sur 12 mesures pour l'échantillon 3DC3T.....	66
Tableau 2.6 Liste des essais pour l'analyse thermique.....	69
Tableau 3.1 Chaleur latente de fusion pour les compositions 25CrMo4, 3DC3T et 1CB3T .....	98
Tableau 3.2 Calibration en température .....	112
Tableau 3.3 Calibration en énergie .....	112
Tableau 3.4 Détermination de l'enthalpie.....	119





## LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1 Moule assemblé chez Finkl Steel (Sorel).....	6
Figure 1.2 (a) Panneaux réfractaires au-dessus de la masselotte, (b) panneaux latéraux réfractaires autour de la masselotte et (c) poudre réfractaire au fond de la lingotière.....	7
Figure 1.3 Schématisation de la macroségrégation dans les lingots de grande taille.....	10
Figure 1.4 Mécanismes de sédimentation des grains et remontés des solutés par convection thermo-solutale (Ludwig et al., 2015) .....	11
Figure 1.5 Zone de transition entre grains équiaxe-colonnaire dans un lingot de 2,45 t (Wu, 2013).....	13
Figure 1.6 Formation des chaînes de dégrégation "V" dans des plans de cisaillement préférentiels entre les grains équiaxes (Pickering 2013) .....	14
Figure 1.7 Section longitudinale d'un lingot 0.5 tonne (a) T.O = $1.0 \times 10^{-3}$ m.% (b) T.O = $1.5 \times 10^{-3}$ m.% (c) T.O = $2.0 \times 10^{-3}$ m.% (d) T.O = $0.7 \times 10^{-3}$ m.% (Li et al., 2014) .....	16
Figure 1.8 (a) Plan des 1800 points d'échantillonnages, (b) cartographie de la concentration de carbone (m.%) (c) cartographie de la concentration de soufre (m.%) (Duan et al., 2016) .....	18
Figure 1.9 Cartographie de la concentration en Cr (gauche) et de la concentration de Mo (droite) à l'aide de la technique (Pickering, 2015).....	19
Figure 1.10 Illustration de la croissance des dendrites colonnaires (à gauche) et équiaxes (à droite) (Liu et al., 2005) .....	20
Figure 1.11 (a) Profil de la température et (b) profil de concentration à l'interface .....	22
Figure 1.12 (a) Schéma du lingot et (b) coupe transversale de celui-ci avec transition colonnaire-équiaxe (Addad, 2007).....	23
Figure 1.13 Influence du carbone sur le coefficient de partage (Addad, 2007) .....	24

Figure 1.14	Diagramme de phases en équilibre thermodynamique Fe – C obtenu avec ThermoCalc®.....	26
Figure 1.15	Schéma du comportement du matériau pour une analyse contrainte-déformation (Transvalor, 2016) .....	29
Figure 1.16	Élément de volume représentatif (Liu, 2005).....	32
Figure 1.17	Interactions entre les phénomènes macroscopiques et microscopiques pendant la solidification d'un lingot (Liu, 2013).....	35
Figure 1.18	Schéma d'écoulement du liquide à travers la structure dendritique.....	38
Figure 1.19	Micrographie au MEB et identification des espaces interdendritiques ( $\lambda_1$ ) primaires, ( $\lambda_2$ ) secondaires et ( $\lambda_3$ ) tertiaires (Cambridge) .....	40
Figure 1.20	(a) Gradient de refroidissement en fonction de la distance par rapport à la surface froide, (b) Vitesse de refroidissement en fonction de la distance de la surface froide, (c) SDAS en fonction de la distance de la surface froide. (Senk et al., 1999).....	42
Figure 1.21	Évolution de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la teneur en carbone à différence vitesses de refroidissement (Won & Thomas, 2001).....	44
Figure 1.22	Effet de la vitesse de refroidissement sur les changements de phase pour 3 aciers (Won & Thomas, 2001).....	45
Figure 1.23	Effet de la vitesse de refroidissement et SDAS sur les changements de phases pour 3 aciers (Won & Thomas, 2001) .....	46
Figure 1.24	Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur le solidus d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015) .....	46
Figure 1.25	Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur le liquidus d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015).....	47
Figure 1.26	Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur l'intervalle de solidification d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015).....	48
Figure 1.27	Attaque métallographique d'une coupe transversale lors d'un essai de solidification dirigée avec phase alpha de l'aluminium (Addad, 2007).....	51

Figure 1.28	Profil de microségrégation dans .....	52
Figure 1.29	Déshydratation et fusion d'un sel dihydraté mises en évidence par DSC-ATG couplés (Grenet & Legendre, 2010).....	53
Figure 1.30	DSC power compensating (Grenet & Legendre, 2010) .....	54
Figure 2.1	Simulation enchainée .....	59
Figure 2.2	(a) Tranche transversale de la masselotte du lingot et (b) échantillonnage de la tranche .....	60
Figure 2.3	Taux de macroségrégation du carbone ( $r_c$ ) (m.% C) dans la masselotte et 30 cm du haut du lingot de 40 t mesurés à l'aide d'un spectromètre optique ARL 4460 .....	61
Figure 2.4	Coupe transversale du lingot 40 t forgé et traité thermiquement .....	62
Figure 2.5	Sélection des échantillons pour la morphologie (gris clair) et la loi de comportement des SDAS (gris foncé) sur la masselotte et les 30 cm du haut d'un lingot 40 t.....	63
Figure 2.6	Sélection des échantillons (gris) sur la masselotte d'un lingot 40 t pour l'étude des températures de transition (Liquidus et Solidus) .....	64
Figure 2.7	Tracé d'une ligne (en jaune) d'échantillonnage .....	67
Figure 2.8	Échantillonnage des SDAS .....	68
Figure 2.9	Cycles thermiques .....	69
Figure 2.10	(a) DSC 404 F1 Pegasus de Netsch®, (b) creusets de .....	70
Figure 2.11	Géométrie et conditions aux limites du modèle à solidification unidirectionnelle.....	71
Figure 2.12	(a) Différence entre maillage fixe et adaptatif, (b) taux de macroségrégation pour maillage fixe et adaptatif .....	73
Figure 2.13	Maillage de la portion du cylindre de solidification dirigée avec une taille de maille moyenne de (a) 3 mm et (b) 1 mm. ....	74
Figure 2.14	Fraction liquide avec un maillage de (a) 3 mm et (b) 1 mm. ....	75
Figure 2.15	Champ de vitesse pour un maillage de 3 mm (a) et de 1 mm (b).....	76
Figure 2.16	Taux de macroségrégation du carbone pour 3 mm (a) et 1 mm (b) .....	77

Figure 2.17	Maille de (a) 1 mm et (b) 500 $\mu\text{m}$ sur 1 cm de solidification .....	77
Figure 2.18	(a) Position des capteurs dans le tube et (b) simulations associées.....	78
Figure 2.19	Température au capteur 5 en fonction du temps des itérations sur l'intervalle de solidification .....	79
Figure 2.20	Tracé des vitesses de refroidissement (courbe bleue) et des températures (courbe rouge) pour le capteur 5 et simulation 7 .....	80
Figure 2.21	Température en fonction du temps des itérations pour les capteurs 7, 8 et 9 dans l'intervalle de solidification. ....	81
Figure 2.22	Géométrie et conditions aux limites du lingot de 40 t.....	83
Figure 2.23	Champ de fraction liquide à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min et (c) 7 h 59 min.....	84
Figure 2.24	Champ de vitesse à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min (grandes vitesses), (c) 4 h 39 min (petites vitesses) et (d) 7 h 59 min .....	85
Figure 2.25	Champ du taux de macroségrégation du carbone à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min et (c) 7 h 59 min .....	86
Figure 2.26	Position des capteurs dans le lingot de 40 t.....	87
Figure 3.1	Position des thermocouples sur le lingot de 40 t.....	90
Figure 3.2	Comparaison des valeurs thermocouples numériques et expérimentales.....	91
Figure 3.3	Simulation du temps de solidification dans un lingot .....	92
Figure 3.4	Fractions des phases lors de la solidification de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T) avec Factsage® et JMatPro® .....	94
Figure 3.5	Capacité thermique massique et Enthalpie de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T) avec Factsage® et JMatPro® .....	95
Figure 3.6	Fraction liquide pour les compositions 25CrMo4 (rouge), 3DC3T (bleu) et 1CB3T (vert).....	96
Figure 3.7	Capacité thermique massique pour les compositions 25CrMo4 (rouge), 3DC3T (bleu) et 1CB3T (vert).....	97
Figure 3.8	Enthalpie pour les compositions .....	97

Figure 3.9	Conductivité thermique du 25CrMo4 d'après Thercast, JMatPro, et l'expérimental (Kvíčala et al., 2015) et conductivité thermique de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T).....	99
Figure 3.10	Phases en présence lors du refroidissement à 1°C/s (losange), 0.1°C/s (rond) et 0.01°C/s (croix) .....	100
Figure 3.11	Micrographies de l'échantillon (a) 1CA2T et (b) 2BE2T.....	101
Figure 3.12	Micrographies des échantillons (a) 3AE1T, (b) 3AE3T, (c) 3BE3T .....	102
Figure 3.13	Carte des échantillons analysés avec les micrographies non-exploitable (rouge), les micrographies avec des grains globulaires (bleu) et les micrographies avec des grains dendritiques (vert) .....	103
Figure 3.14	Micrographies des échantillons (a) 3AE1T, (b) 3AE2T, (c) 3AE3T, (d) 3AE4T, (e) 3AE5T, (f) 3BE1T, (g) 3BE2T, (h) 3BE3T, (i) 3BE4T, (j) 3BE5T .....	104
Figure 3.15	SDAS en fonction de la distance du centre du lingot de 40 t.....	105
Figure 3.16	Superposition de la carte d'échantillonnage et des vitesses de refroidissement moyennes lors de la solidification d'un lingot de 40 t.....	107
Figure 3.17	SDAS en fonction de la vitesse de refroidissement moyenne lors de la solidification dans le lingot de 40 t .....	108
Figure 3.18	Comparaison entre la loi tracé et la loi de Won pour deux compositions chimiques (m.% C = 0.38 et 0.46) .....	110
Figure 3.19	Courbe de calibration pour l'élément argent .....	111
Figure 3.20	Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage .....	114
Figure 3.21	Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement .....	115
Figure 3.22	Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage .....	116
Figure 3.23	Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement .....	117
Figure 3.24	Capacité thermique massique lors du refroidissement.....	118

Figure 3.25	Évolution des températures de transition avec la vitesse de refroidissement .....	120
Figure 3.26	Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage .....	122
Figure 3.27	Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement .....	122
Figure 3.28	Évolution des températures de transition avec la vitesse de refroidissement .....	123
Figure 3.29	Zone du lingot de 40 t avec les vitesses respectant la loi de Won .....	124
Figure 3.30	Taux de macroségrégation négative du carbone dans après la solidification d'un alliage 25CrMo4, (a) $T_s = 1200\text{ °C}$ et (b) $T_s = 1000\text{ °C}$ .....	125
Figure 3.31	Résultats avec (a) l'algorithme thermomécanique et (b) thermohydraulique .....	127
Figure 3.32	Lignes de mesure.....	128
Figure 3.33	Taux de macroségrégation sur les lignes de mesure .....	128
Figure 3.34	Stabilité de la résolution thermomécanique .....	130
Figure 3.35	Taux de macroségrégation négative du carbone dans après la solidification d'un alliage 25CrMo4, (a) SDAS constant et (b) SDAS adaptatif.....	131
Figure 3.36	Taux de macroségrégation le long de la ligne des capteurs à SDAS constant (bleu) et SDAS adaptatif (rouge) .....	131
Figure 3.37	Taux de macroségrégation sur un lingot de 40 t après (a) 4 h 39, (b) 7 h 59, (c) 14 h 49 (échelle 1) et (d) 14 h 49 (échelle 2) de solidification.....	133

## LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

EDS	Analyse dispersive en énergie <i>Energy-Dispersive Spectroscopy</i>
DSC	Analyse calorimétrique différentielle <i>Differential Scanning Calorimetry</i>
DTA	Analyse thermique différentielle <i>Differential Thermal Analysis</i>
MEB	Microscope Électronique à Balayage
SDAS	Espace interdendritique secondaire <i>Secondary Dendrite Arm Spacing</i>
STA	Simultaneous Thermal Analysis
TGA	Analyse thermogravimétrique <i>Thermal Gravimetric analysis</i>
WDS	Analyse dispersive en longueur d'onde <i>Wavelength Dispersive X-ray Spectroscopy</i>





## LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

### Alphabet latin

c	Concentration moyenne (m.%, pourcentage massique)
$c_p$	Capacité calorifique massique ( $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )
$C_r$	Vitesse de refroidissement ( $\text{K.s}^{-1}$ )
D	Coefficient de diffusion ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ )
f	Fraction massique de phase (-)
g	Fraction volumique de phase (-)
h	Enthalpie massique ( $\text{J.kg}^{-1}$ )
h	Coefficient d'échange thermique ( $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ )
H	Enthalpie volumique ( $\text{J.m}^{-3}$ )
k	Constante du modèle de Kozeny-Carman
K	Perméabilité ( $\text{m}^2$ )
$k_p$	Coefficient de partage (-)
m	Pente du liquidus ( $\text{K.m.}\%^{-1}$ )
n	Pente de la limite de transformation Ar4 ( $\text{K.m.}\%^{-1}$ )
P	Pression (Pa)
r	Taux de macroségrégation (-)
S	Critère de Sawada ( $\text{K.m.s}^{-2}$ )
$t_f$	Temps de solidification (s)
T	Température (K)
$T_{\text{pur}}$	Température de fusion de l'élément principal d'un alliage (K)
$T_{\text{liq}}$	Température du liquidus (K)
$T_{\text{sol}}$	Température du solidus (K)
V	Vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ )
V	Vitesse de solidification ( $\text{m.s}^{-1}$ )

### **Alphabet grec**

$\alpha$	Diffusivité thermique ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ )
$\alpha$	Nombre de fourrier (-)
$\beta$	Coefficient de dilatation solutale ( $\text{m}.\%^{-1}$ )
$\beta$	Coefficient de dilatation thermique ( $\text{K}^{-1}$ )
$\beta$	Paramètre de « back-diffusion » (-)
$\varepsilon$	Coefficient de diffusion ( $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ )
$\kappa$	Conductivité thermique ( $\text{W}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )
$\lambda_1$	Espace interdendritique primaire (m)
$\lambda_2$	Espace interdendritique secondaire (m)
$\mu$	Viscosité dynamique ( $\text{Pa}.\text{s}$ )
$\rho$	Masse volumique ( $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ )

## INTRODUCTION

La taille des composants en métal fournis aux industries de l'aéronautique, du transport et de l'énergie est en permanente expansion ces dernières décennies. Ces industries ont besoin de certifier ces pièces métalliques pour atteindre les normes de qualité voulues. Lors de la solidification de ces pièces de grande taille, des phénomènes de macroségrégation apparaissent au sein du lingot. Cette macroségrégation, qui se réfère à des hétérogénéités chimiques des éléments d'alliages provoque une hétérogénéité dans les propriétés mécaniques de la pièce.

La caractérisation expérimentale de la macroségrégation est très coûteuse et requiert beaucoup de temps. Ainsi, des méthodes alternatives telles que la simulation numérique par éléments finis ou volumes finis permettent de contourner ces limitations.

Cependant, la qualité de la prédiction de la macroségrégation est dépendante de la bonne estimation des propriétés du matériau utilisé. D'autant plus que des phénomènes tels que les cinétiques de refroidissement ne sont pas pris en considération lors de la simulation. L'objectif de ce travail est de mettre en évidence l'influence des vitesses de refroidissement lors de la solidification sur certaines caractéristiques du matériau (l'espace interdendritique secondaire, le liquidus et le solidus). Cela dans l'idée de mesurer l'impact de cette optimisation sur les prédictions de macroségrégation.

Ce mémoire sera organisé en 3 chapitres :

Chapitre 1 : Cette partie s'orientera sur les phénomènes physiques qui régissent la macroségrégation en se focalisant principalement sur les caractéristiques de la macroségrégation dans les lingots de grande taille. Ensuite, une revue sur les différents algorithmes numériques simulant la macroségrégation sera réalisée. Enfin, un état de l'art sur le comportement des paramètres étudiés en fonction de la vitesse de refroidissement sera détaillé.

Chapitre 2 : Ce chapitre sera orienté sur l'analyse de la méthodologie qui a été adoptée lors de cette étude. En passant tout d'abord par la sélection des échantillons pour l'analyse thermique et l'analyse microstructurale en fonction de la cinétique. Ensuite, la conception de deux modèles numériques a été réalisée afin de voir l'influence du changement des paramètres étudiés sur la macroségrégation. Une étude sur le maillage notamment, a été réalisée afin d'avoir un bon équilibre entre le temps de simulation et les prédictions du logiciel.

Chapitre 3 : Cette dernière partie regroupe tout d'abord, les résultats de l'analyse microstructurale avec une loi de comportement sur l'espace interdendritique secondaire dans les lingots de grande taille. Puis, le comportement des températures de transition en fonction de la vitesse de refroidissement lors de la solidification a été mesuré. Enfin, les résultats sur les deux modèles de macroségrégation ont permis d'analyser l'influence de l'optimisation des propriétés du matériau sur la prédiction de la macroségrégation.

# **CHAPITRE 1**

## **Revue de littérature**

### **1.1 Introduction**

L'objectif de ce travail est d'améliorer la prédiction des cartes de macroségrégation chimique en implémentant dans le logiciel Thercast® certaines propriétés du matériau déterminées en fonction de la vitesse de refroidissement. Ce logiciel par éléments finis permet de simuler la solidification de la macroségrégation en coulée continue et en lingotière. Avant de pouvoir améliorer l'estimation de ces propriétés, cette revue de littérature a pour objectif, d'illustrer les mécanismes régissant la macroségrégation, et ainsi de la prédire au sein des lingots de grande taille.

Tout d'abord, une présentation de l'entreprise sera réalisée avec une description du processus de coulée et de mise en forme d'un lingot, afin de poser le contexte de l'étude.

Une deuxième partie aura pour but de définir la macroségrégation. L'analyse se fera à partir de l'échelle macroscopique où il y sera expliqué les problèmes que l'industriel rencontre au sein des lingots de grande taille. Ensuite, les techniques expérimentales de révélation des cartes de macroségrégation seront explicitées. Pour enfin finir sur les mécanismes de microsegrégation intervenants à l'échelle microscopique.

Une troisième partie sera axée sur la simulation numérique de la macroségrégation. Celle-ci englobera les principaux modèles numériques existants mais se concentrera plus particulièrement sur les modèles utilisés par Thercast®, qui est le logiciel utilisé dans le cadre de ce travail.

Finalement, un état de l'art sur l'étude du comportement des paramètres étudiés en fonction de la vitesse de refroidissement dans les aciers sera dressé, ainsi qu'une présentation des

principaux appareils utilisés afin de mesurer cette influence, avec une attention particulière sur les instruments utilisés dans le cadre de cette étude.

## **1.2 Coulée des lingots d'aciers de grande taille**

Le but de cette partie est de poser le contexte de l'étude et de donner un point de vue général sur le cycle de fabrication d'un lingot de diamètre 63'' (160 cm) et de masse 40 t, avec de l'acier faiblement allié. Un développement sera réalisé sur l'aciérie qui est le département encadrant ce travail. Enfin, une brève illustration des problèmes d'hétérogénéité des propriétés sera faite afin de comprendre en quoi cette étude répond aux besoins de l'industriel.

### **1.2.1 Cycle de fabrication et étapes de l'aciérie**

Le partenaire industriel, Finkl Steel (Sorel), est spécialisé dans la coulée et la mise en forme d'arbres, de «slabs» (forme parallélépipédique) et de barres en acier à haute résistance mécanique. Ces pièces connaissent plusieurs étapes de fabrication avant d'être livrées au client dont les 5 principales qui sont :

- 1- Aciérie,
  - Le moulage,
  - La fusion,
  - Correction de la composition chimique,
  - Le dégazage,
  - La coulée.
- 2- Le forgeage,
- 3- Le traitement thermique,
- 4- L'usinage,
- 5- Contrôle qualité (non-destructif).

Le propos de cette partie est orienté sur la 1<sup>ère</sup> étape qui appartient au département de l'aciérie.

- **Moulage**

La première étape consiste à préparer le moule, par l'assemblage des différentes parties (Figure 1.1). La « plate » est le support de tout le système, elle comporte en son sein, les canaux d'alimentation du métal liquide qui sont connectés directement à la trempette (Figure 1.1). Cette dernière est fabriquée en fonte et elle est doublée avec un matériau réfractaire. C'est par ce conduit que le métal passera après avoir été versé par la poche de coulée. On dit que « l'attaque est vers le bas » car le lingot est rempli par le dessous afin de diminuer les turbulences.

La lingotière est ensuite posée sur la « plate » (Figure 1.1). Celle-ci possède une forme particulière à l'intérieur : les parois de la lingotière ont un angle de dépouille entre 8 et 12° afin de faciliter le démoulage (i.e. l'extraction du lingot). De plus, elles ont une surface ondulée afin d'accroître la surface de contact entre le moule et le lingot, l'ensemble de ces courbes est appelé « flûtes » (Figure 1.2). Ces dernières permettent d'augmenter la vitesse de refroidissement du lingot. Ensuite, la poudre exothermique est déposée en fond de lingot dans des sacs (Figure 1.2). Au moment du remplissage, cette poudre va couvrir le front de remplissage du métal encore liquide afin d'éviter toute oxydation.

Finalement, le couvercle, appelé « masselotte » de la lingotière est ajouté (Figure 1.1). Cette partie supplémentaire ajoutée au lingot permet de compenser en matière, le retrait volumique global lors de la solidification dû à la contraction du métal. Des panneaux réfractaires sont également ajoutés au-dessus et sur les pans du couvercle afin de ralentir le refroidissement dans cette partie. Ainsi, la masselotte sera la dernière région du lingot à se solidifier (Figure 1.2).

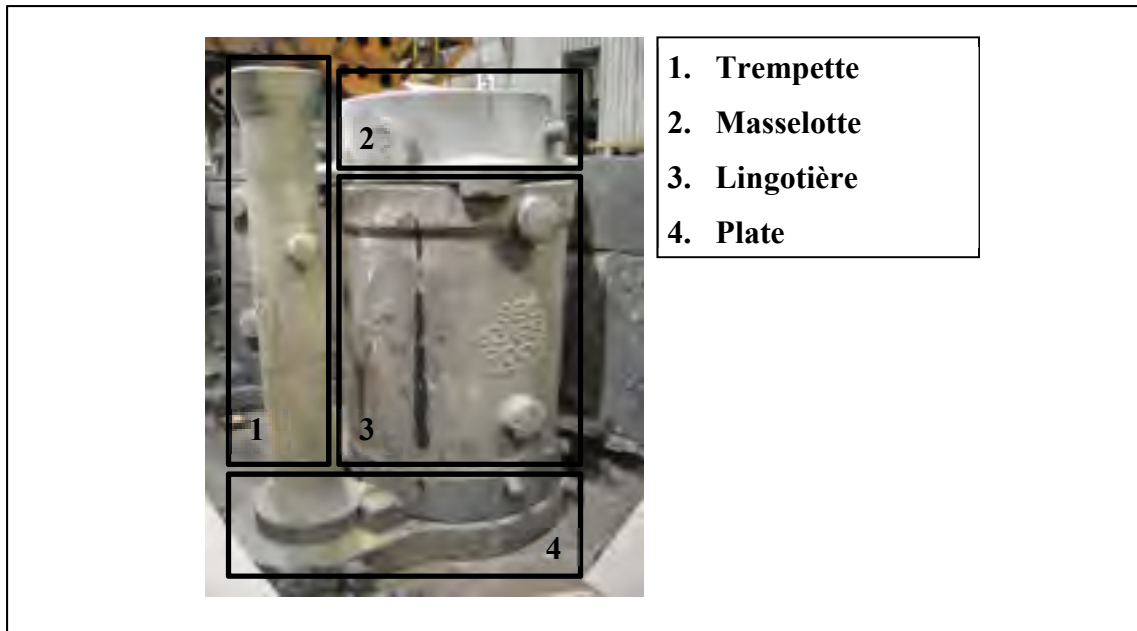


Figure 1.1 Moule assemblé chez Finkl Steel (Sorel)

- **Fusion**

Parallèlement au processus précédent, un mélange de métal fondu est préparé. Celui-ci est composé de ferraille, de copeaux d'usinages, de pièces en rebut ou de roues de train. Ensuite, un four à arc avec trois électrodes en graphite est utilisé afin de faire fondre toute cette charge pesant entre 42.4 t et 42.8 t. Un retrait du laitier sera réalisé avant que le métal en sortie du four soit versé dans une poche de coulée, qui est le réceptacle transitoire entre le four et le lingot permettant de déplacer le métal en fusion dans l'aciérie.

- **Correction de la composition chimique**

Cette étape a pour objectif de vérifier que la composition chimique dans la poche de coulée est proche de la teneur nominale voulue. La poche est placée sur un brûleur et un échantillon est prélevé au moyen d'une louche. Un intervalle de tolérance est fixé pour chaque élément, défini par l'industriel.



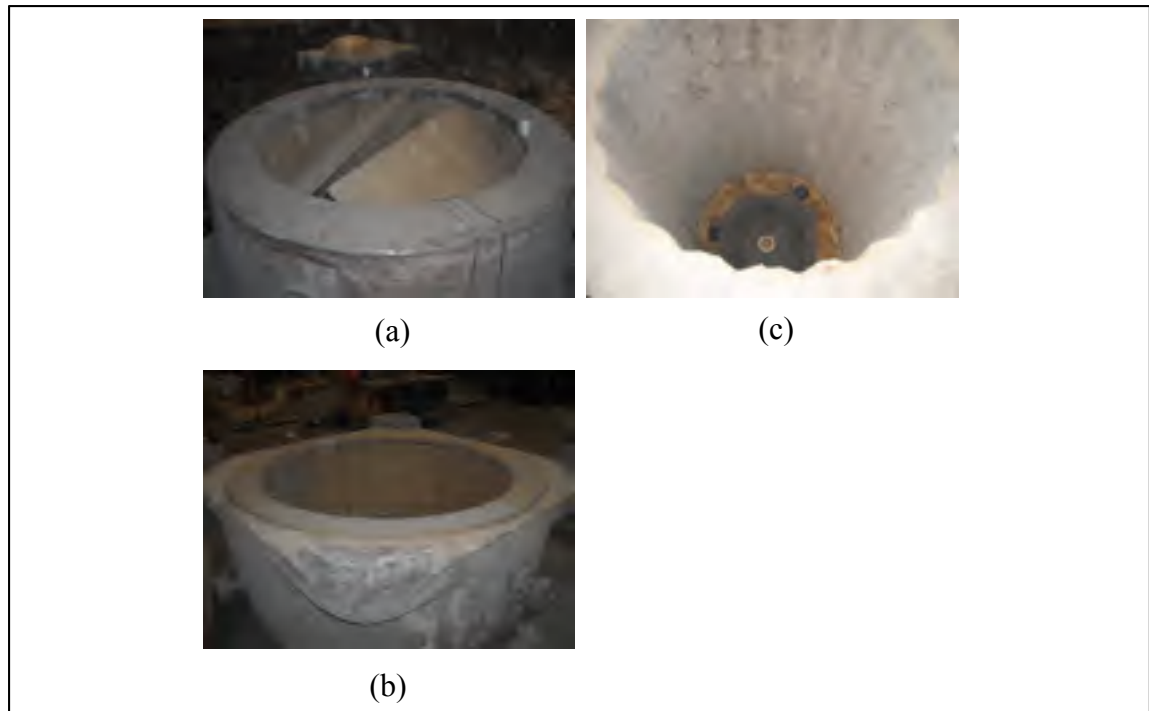


Figure 1.2 (a) Panneaux réfractaires au-dessus de la masselotte, (b) panneaux latéraux réfractaires autour de la masselotte et (c) poudre réfractaire au fond de la lingotière

- **Dégazage**

L'intérêt du dégazage est de chasser l'hydrogène ou l'oxygène dissout dans le métal liquide afin d'éviter la formation d'inclusions (i.e. structure étrangère au métal, bien souvent à base d'oxygène et de soufre). La poche de coulée est placée dans un endroit spécifique au dégazage et un couvercle est posé sur la poche. Le vide est alors fait et de l'argon est injecté à travers le métal par le bas afin de créer des chemins de passage pour l'hydrogène et l'oxygène.

- **Coulée**

L'opération finale est de remplir la lingotière par de l'acier liquide. Le remplissage se fait par le bas, le métal est versé par la poche de coulée dans le chemin de coulée. Celui-ci est composé de la trempette et des canaux d'alimentation. Le démoulage est ensuite réalisé après 13h.

### **1.2.2 Hétérogénéités dues aux vitesses de refroidissement dans un lingot de grande taille**

Les propriétés mécaniques relevées dans un lingot de grande taille sont bien souvent hétérogènes (module d'Young, dureté HRC, limite d'écoulement, etc...) (Zhang et al., 2017). Ces hétérogénéités mécaniques proviennent principalement des hétérogénéités microstructurales (taille des grains) (Gouttebroze, Bellet, Combeau, & Gobin, 2005; Wu, Li., Kharicha, & Ludwig, 2013) et de l'hétérogénéité chimique que l'on appelle macroségrégation (Ed J. Pickering et al., 2015). Comme les lingots sont assez épais, le métal près des parois et dans le cœur ne connaissent pas les mêmes cycles thermiques. Ainsi une corrélation peut être faite entre la vitesse de refroidissement et ces hétérogénéités. La partie suivante permettra d'analyser ces phénomènes et de discuter de leurs causes.

## **1.3 Macroségrégation**

Cette section sera axée sur la description des principaux mécanismes qui régissent la macroségrégation. La première partie s'appuiera sur les caractéristiques des cartes de macroségrégation et les différents mécanismes macroscopiques qui en sont les causes. Ensuite, les techniques de mise en valeur de ces cartes seront présentées. Enfin, une description microscopique sera faite avec les différentes équations empiriques caractérisant le phénomène de macroségrégation qui est un phénomène diffusif dans la zone de transition liquide-solide.

### **1.3.1 Macroségrégation dans les lingots de grande taille**

Dans cette partie, le but sera de discuter des avancées des dernières années en terme d'études expérimentales qui existent sur la macroségrégation des lingots d'acier de grande taille. En effet, la diffusion ne suffit pas à décrire la macroségrégation (Guillemot, 2017). La mécanique des fluides impliquant des phénomènes convectifs rentre en jeu, car des flux viennent perturber les éléments, des mécanismes bien connus des chercheurs seront abordés ici (grains équiaxe, zone colonnaire, branches de ségrégation « A ») ainsi que des hypothèses sur des mécanismes encore à l'état de recherche comme les remontées d'oxyde, les branches de ségrégation « V »

et les bandes de ségrégation près des surfaces. Il sera montré par la suite la manière dont la simulation peut décrire au mieux ces phénomènes (Liu, 2005; E. J. Pickering, 2013; Wang, He, Peng, Yang, & Zhai, 2010).

#### **1.3.1.1 Mécanismes principaux**

La macroségrégation dans les lingots de grande taille est un domaine d'étude encore à l'état de recherche car réaliser des mesures sur ces lingots après une coulée est coûteux pour un industriel. Les tendances de macroségrégation positives (i.e. avec une teneur en éléments d'addition supérieure à la teneur nominale) et de macroségrégation négative (i.e. avec une teneur en éléments d'addition inférieure à la teneur nominale) sont les deux types de macroségrégation (Figure 1.3). Ces dernières formeront ensuite des motifs dans les lingots de grande taille plus ou moins étudié (Figure 1.3). En effet, ces derniers ne sont pas forcément intéressants pour l'industriel. Il se délestera des problèmes de macroségrégation qui se situent à des endroits du lingot non fonctionnels. C'est le cas des chaînes de ségrégation « V », qui sont des motifs très peu étudiés dans la littérature. Celles-ci se trouvent au centre des lingots et seront souvent supprimées après usinage comme dans le cas des citernes (E. J. Pickering, 2013).

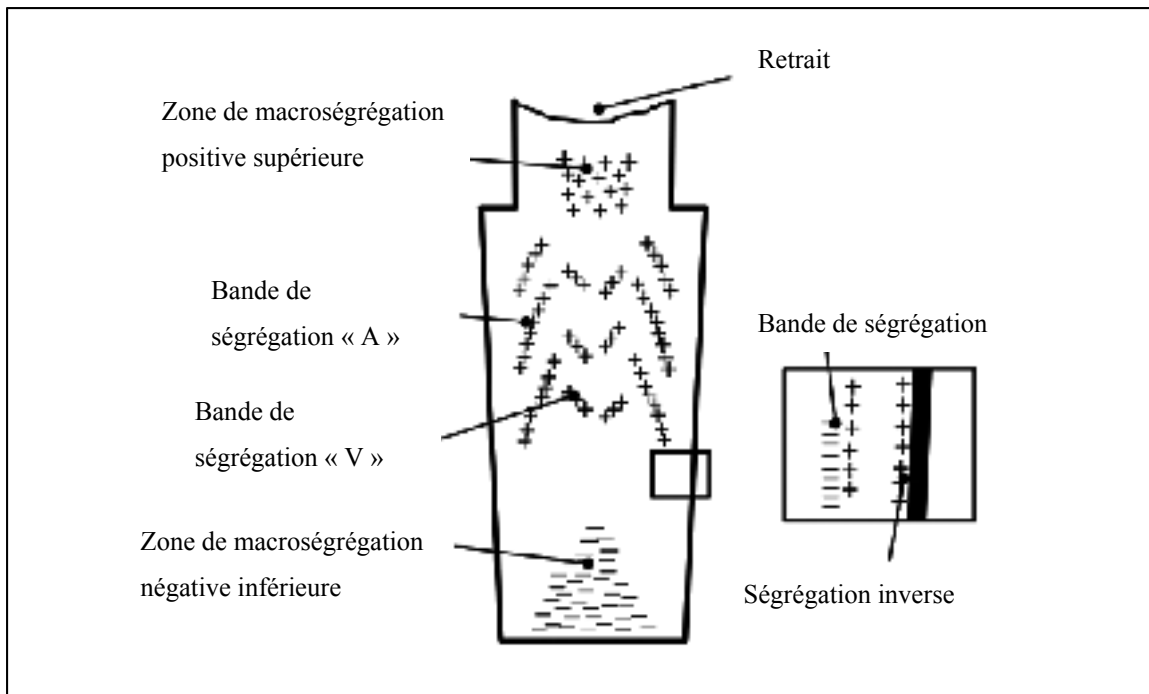


Figure 1.3 Schématisation de la macroségrégation dans les lingots de grande taille (Pickering, 2013)

Il existe une multitude de mécanismes amorçant la macroségrégation au sein des lingots de grande taille. Ces derniers sont souvent liés à des phénomènes convectifs de transport de masse avec des liquides plus ou moins concentrés en solutés par rapport à concentration nominale tels que Ludwig, Wu, & Kharicha, 2015; E. J. Pickering, 2013 l'ont montré. Les principaux phénomènes sont :

- Les flux convectifs dus aux gradients de température et de compositions chimiques dans le mélange. Ces flux peuvent avoir la même contribution ou être en opposition dépendamment des endroits dans le lingot et de la densité des solutés. On parlera plus tard de convection thermo-solutale (Figure 1.4) (E. J. Pickering, 2013; Wu, Fjeld, & Ludwig, 2010).
- Les flux dus à la déformation du solide causés par la contraction volumique globale du solide avec les contraintes thermique ou les contraintes imposées par le liquide en cours de solidification au-dessus du solide (E. J. Pickering, 2013).
- Les flux de métal liquide imposés lors de la coulée (Wang et al., 2010; Zhang et al., 2017).

- Le mouvement des grains équiaxes qui ont germés au sein du lingot de manière hétérogène après le détachement de dendrites colonnaires sur les parois du lingot dus au flux lors de la coulée ou aux contraintes résiduelles après refroidissement. Les grains équiaxes sont antagonistes aux grains colonnaires car ils ne connaissent pas de direction privilégiée lors de leur croissance. Ces grains étant plus denses que le liquide, auront tendance à tomber dans le fond du lingot (Figure 1.4) (Ludwig, Wu, & Kharicha, 2015).

Ludwig et al., 2015; E. J. Pickering, 2013 tentent de résumer les mécanismes (Figure 1.4) :

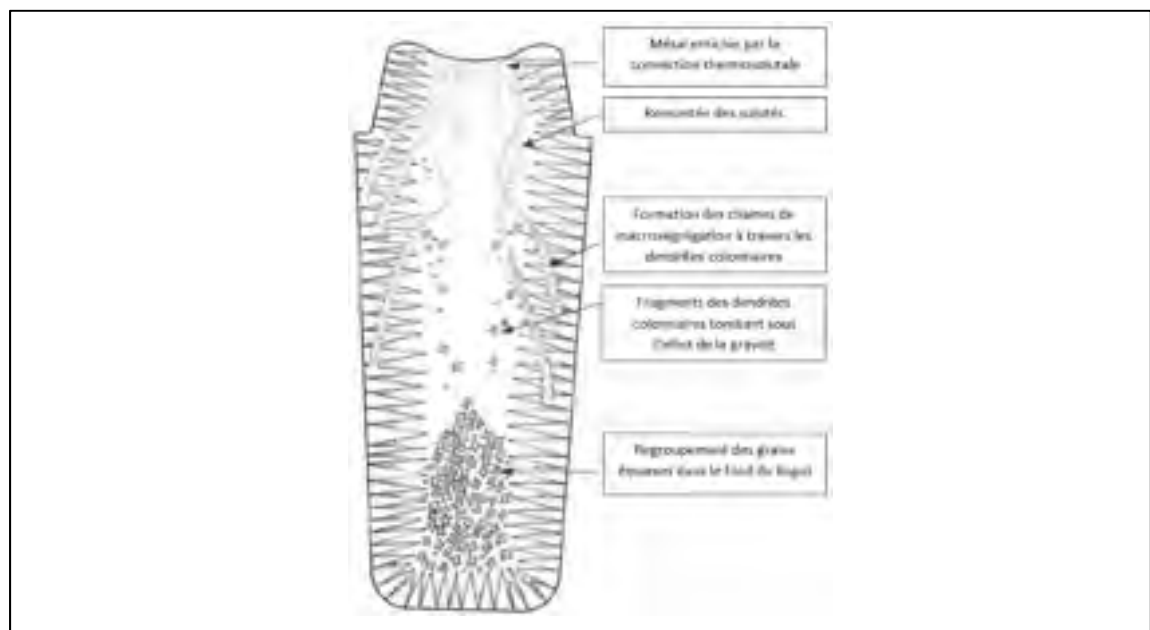


Figure 1.4 Mécanismes de sédimentation des grains et remontée des solutés par convection thermo-solutale (Ludwig et al., 2015)

- **Chaîne de ségrégation de type « A »**

Les bandes (ou chaînes) de ségrégation « A » se forment à mi-distance entre les surfaces du lingot et le centre de ce dernier (Figure 1.3). Ces bandes de ségrégation positives sont dues à l'enrichissement des zones interdendritiques en éléments d'additions, dû au rejet de ces derniers par les dendrites (microségrégation). Ce mélange enrichi en solutés est souvent moins

dense que le liquide en fusion, ainsi ce mélange enrichi aura tendance à monter. La température étant plus élevée vers le haut, celui-ci va continuer à chauffer et parfois connaître une refusion en enrichissant le mélange se solidifiant autour (E. J. Pickering, 2013).

- **Zone de macroségrégation négative inférieure**

Le phénomène impliquant la forte présence de macroségrégation négative dans la zone inférieure du lingot (Figure 1.3) est encore un sujet très controversé car on peut l'expliquer par deux phénomènes majeurs mais sans savoir lequel de ces derniers est prédominant (E. J. Pickering, 2013). Comme il a été mentionné précédemment, les grains équiaxes se formant à partir de germes ou de dendrites arrachées sont plus denses que le liquide, ainsi ces derniers vont tomber sous l'action de la gravité dans le fond du lingot, ce que l'on appelle la sédimentation. Cette dernière en plus de créer une hétérogénéité par rapport à la chimie, va créer une hétérogénéité par rapport à la morphologie des grains créant une zone de transition entre ces deux morphologies appelée la zone CET (Figure 1.5). La deuxième hypothèse est que cette zone est la première à se solidifier juste après le remplissage du lingot. En effet, le passage du front de solidification dans cette zone va l'appauvrir en rejetant les éléments d'additions en amont de celui-ci (E. J. Pickering, 2013).

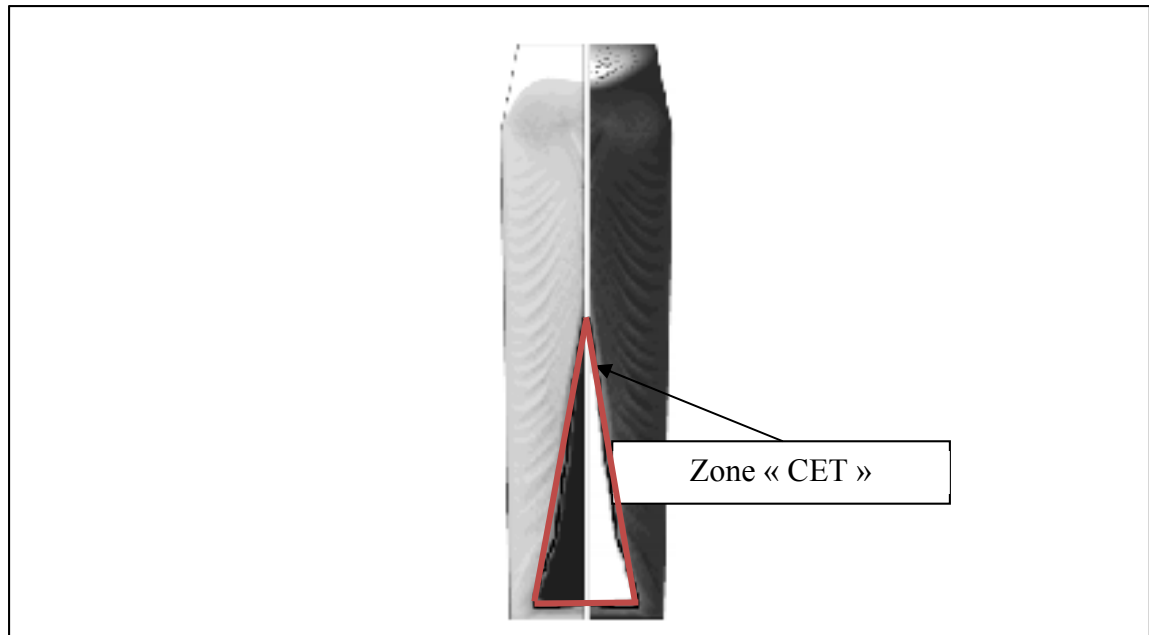


Figure 1.5 Zone de transition CET entre grains équiaxe-colonnaire dans un lingot de 2,45 t (Wu, 2013)

- **Chaine de ségrégation de type « V »**

Un phénomène assez intéressant est la formation de ces chaines qui se forment à la fin de la solidification (Figure 1.3), celui-ci est un des moins documenté car il n'intéresse pas forcément les industriels. En effet, les lingots de grande taille sont souvent utilisés à la confection de cuves ou de citerne, ainsi la partie centrale sera bien souvent évidée, ne motivant pas les industriels à se soucier de ce problème. A la fin de la solidification le solide au-dessus de cette zone provoque des contraintes qui viennent solliciter le matériau. Des plans de cisaillement se forment ainsi à 45° et le mélange enrichi en éléments d'addition encore liquide vient s'infiltrer dans ces cavités (Figure 1.6) (E. J. Pickering, 2013).

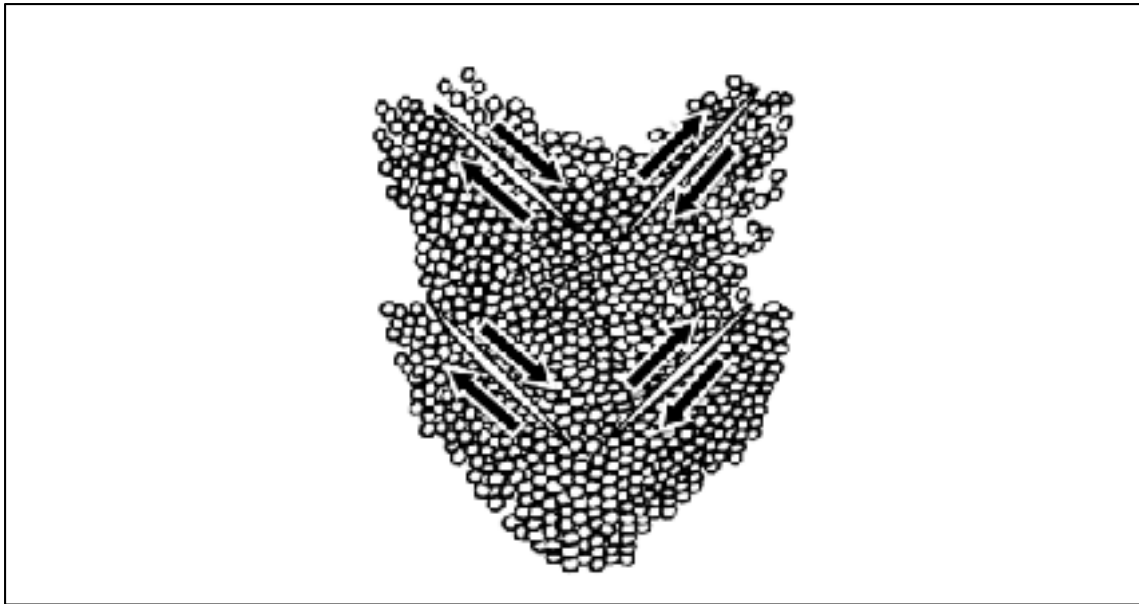


Figure 1.6 Formation des chaînes de ségrégation "V" dans des plans de cisaillement préférentiels entre les grains équiaxes (Pickering 2013)

- **Zone de macroségrégation positive supérieure, bandes et ségrégation inverse**

Ces trois dernières zones ont été regroupées car elles sont fortement dépendantes des conditions de coulée et ne sont pas forcément présentes dans tous les lingots de grande taille (Figure 1.3).

La zone de macroségrégation positive supérieure est une zone se formant à la fin de la solidification du lingot, celle-ci se forme après que le front de solidification venu du bas atteigne la masselotte ainsi que les fronts de solidification transversaux (E. J. Pickering, 2013). Des études ont été faites montrant que cette zone pouvait être influencée par la vitesse de remplissage (Zhang et al., 2017).

Les bandes de ségrégation près de la paroi sont dues au changement brutal de température qui existe dans la zone de transition liquide-solide au début de la solidification. De plus, lors de ce changement brusque, le métal va se contracter près des parois du lingot, ce qui va créer un jeu,



ainsi le métal liquide riche en soluté va s'infiltrer enrichissant cette zone, que l'on appelle « ségrégation inverse » (Figure 1.3)(E. J. Pickering, 2013).

### 1.3.1.2 Hypothèses supplémentaires

- **Critère de Suzuki**

Le critère de Suzuki (S) , dont le créateur éponyme est un des premiers à avoir mis en évidence la formation des chaines de ségrégation « A » sous des conditions reposant sur la vitesse de solidification ( $C_r$ ) et la vitesse du front de solidification (V). Celui-ci se définit tel que :

$$C_r \cdot V < S \quad (1.1)$$

Ainsi, la ségrégation « A » aura tendance à se former dans les zones qui satisferont ce critère. Sawada, Suzuki, & Kajikawa, 2016 ont utilisé ce dernier afin de discuter de l'influence de ces deux paramètres sur la formation de branches « A » lors d'une solidification latérale d'une cavité (surface rectangulaire adiabatique avec une unique condition aux limites en température sur un côté). Grâce à ce critère, il a montré dans un premier temps que plus la différence est grande entre les densités de l'élément principal et l'élément d'addition, plus la formation des branches de ségrégation « A » sera intense. Puis, une pente du liquidus plus douce aura aussi un effet catalyseur sur la formation de ces branches (Sawada, Suzuki, & Kajikawa, 2016).

- **Présence d'oxyde**

Li et al., 2014 ont mis en évidence l'influence des remontées d'oxyde lors de la solidification sur la macroségrégation. Cette hypothèse vient expliquer les phénomènes des chaines de ségrégation de type « A » ou plutôt compléter les hypothèses préexistantes (Li et al., 2014).

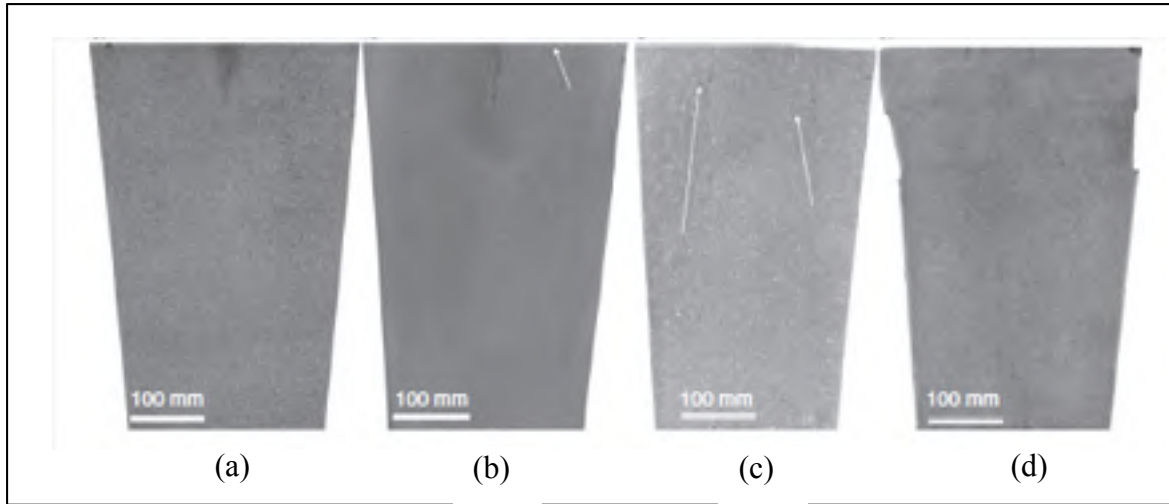


Figure 1.7 Section longitudinale d'un lingot 0.5 tonne (a) T.O =  $1.0 \times 10^{-3}$  m.% (b) T.O =  $1.5 \times 10^{-3}$  m.% (c) T.O =  $2.0 \times 10^{-3}$  m.% (d) T.O =  $0.7 \times 10^{-3}$  m.% (Li et al., 2014)

Sur les coupes du lingot de 0,5 t, la teneur en oxygène est notée « T.O », il est clairement observable qu'en fonction de cette dernière, on constate des lignes de ségrégation « A » (Figure 1.7). En effet, plus cette concentration est grande, plus ces lignes sont marquées comme le montrent les flèches blanches sur (c), il est donc possible d'optimiser la teneur optimale pour ne pas avoir de chaîne (Figure 1.7). La flottation des oxydes a souvent été négligée, mais Li et al., 2014 par leurs essais, considèrent cela comme une force motrice. Dans les modèles présentés avant, les chaînes de ségrégation « A » étaient formées par le gradient de densité entre l'espace interdendritique et le liquide. Selon Li et al., 2014, dans les aciers avec un taux de carbone de moins de 0.77 m.%, la convection ne peut être expliquée que par cela, cette convection serait trop faible. L'influence de l'oxygène peut être expliquée par la remontée des particules d'oxygène le long des dendrites primaires ou entre celles-ci. Ensuite, l'accumulation des particules dans les branches des dendrites secondaires ou encore l'érosion des dendrites avec les frottements des particules d'oxygène le long des branches dendritiques participent à la microségrégation au sein des branches de type «A» (Li et al., 2014).

### 1.3.2 Techniques de mesures de la macroségrégation

L'analyse qualitative et quantitative de la macroségrégation dans les lingots de grande taille est très coûteuse en terme financier et de temps car celle-ci implique de détruire le lingot. Les objectifs de ces analyses sont de connaître les éléments qui ont ségrégué, à quels endroits (analyse qualitative) et en quelle quantité (analyse quantitative), grâce à des indicateurs comme le taux de macroségrégation  $r$  :

$$r = \frac{c_{0,i} - c_i}{c_{0,i}} \quad (1.2)$$

Avec la concentration massique nominale d'un élément d'alliage  $i$  ( $c_{0,i}$ ), et la concentration de cet élément à l'instant  $t$  ( $c_i$ ). Des méthodes de contrôle non-destructif n'existent pas pour caractériser la chimie au cœur du lingot. Ainsi, le lingot est bien souvent coupé puis les analyses chimiques superficielles sont réalisées de manières différentes.

- **Analyse qualitative**

La première technique pour caractériser la macroségrégation est une analyse qualitative qui consiste à attaquer chimiquement la surface du lingot et faire réagir les éléments en présence afin de les colorer, on appelle cette technique le « macroetching ». Dans le cas de Ma (Ma & Li, 2016) tentant de faire ressortir les bandes de ségrégations sur un acier faiblement allié, la surface à analyser et d'abord meulée puis polie. Par la suite, celle-ci est attaquée chimiquement par différents types de solutions (20 vol%  $\text{HNO}_3$  – 5 vol%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  –  $\text{H}_2\text{O}$ , 20 vol%  $\text{HNO}_3$ – $\text{H}_2\text{O}$  and 5 vol%  $\text{HNO}_3$ – $\text{H}_2\text{O}$ ), et finalement nettoyée avec du  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ , du coton, rincée et séchée à l'air chaud. Le problème de ce genre d'analyse est qu'elle apporte une carte de macroségrégation qualitative et n'apporte pas d'idée sur la nature ou le degré des éléments qui ont macroségrégé.

- **Analyse quantitative**

Plusieurs techniques existent pour quantifier cette ségrégation. Des articles (Duan, Tu, Shen, Shen, & Liu, 2016; Loucif et al., 2016; Ed J. Pickering et al., 2015) traitent de la mesure de la macroségrégation par divers moyens. Dans le cas de la première technique présentée, des mesures sont réalisées à l'aide d'un analyseur infrarouge carbone/soufre, sur 1800 points de mesure, disposés sur une résolution de  $30 \times 30 \text{ mm}^2$  sur toute la moitié de la section transversale. Grâce à cette analyse, l'auteur est capable de reconstituer la carte de macroségrégation (Figure 1.8).

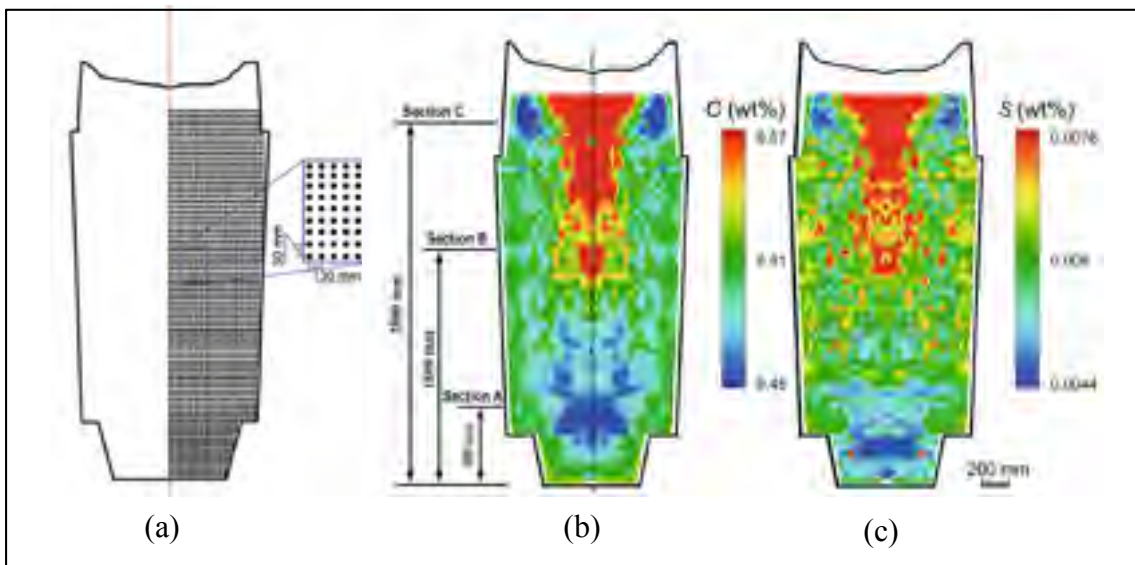


Figure 1.8 (a) Plan des 1800 points d'échantillonnages, (b) cartographie de la concentration de carbone (m.%) (c) cartographie de la concentration de soufre (m.%) (Duan et al., 2016)

Avec 1800 points d'échantillonnage, il est possible d'obtenir une cartographie assez caractéristique de la macroségrégation dans les aciers, comme la forte concentration de carbone et de soufre dans la masselotte ainsi que la zone de macroségrégation négative inférieure dans le bas du lingot. Cependant, le problème de cette méthode est l'approximation entre les points. En effet, un point de mesure est établi tous les 3 cm, ce qui impacte la résolution et peut conduire à des erreurs d'estimation de concentration locale, notamment sur le fait qu'il est

impossible d'identifier les chaînes de macroségrégation de type « A » ou de type « V » (Figure 1.8).

Loucif et al., 2016 utilisent une méthode de discrétisation analogue avec un spectromètre optique, cette dernière méthode est très intéressante car d'autres teneurs en élément peuvent être analysées comme le manganèse (Mn), le nickel (Ni), le chrome (Cr) et le molybdène (Mo). Ainsi, comme précédemment, une tranche transversale du lingot est analysée mais cette fois-ci, l'analyse est réalisée sur la masselotte d'un lingot de 40 t (Loucif et al., 2016).

Ed J. Pickering et al., 2015 utilisent une méthode permettant de cartographier la ségrégation car la résolution est plus élevée sur la section contrôlée (71 000 points) (Figure 1.9). Le lingot en question est plus petit que ceux de Finkl Steel (Sorel), celui-ci est de 12 t. La technique utilisée est la spectrométrie de fluorescence des rayons X (XRF). La meilleure résolution de celle-ci permet de discerner les chaînes de ségrégation de « type A ». Cependant, si la concentration d'éléments est faible, la sensibilité de la machine ne permet pas d'établir une carte de macroségrégation pour ces éléments (Mg et Ni dans le cas de Ed J. Pickering et al., 2015).

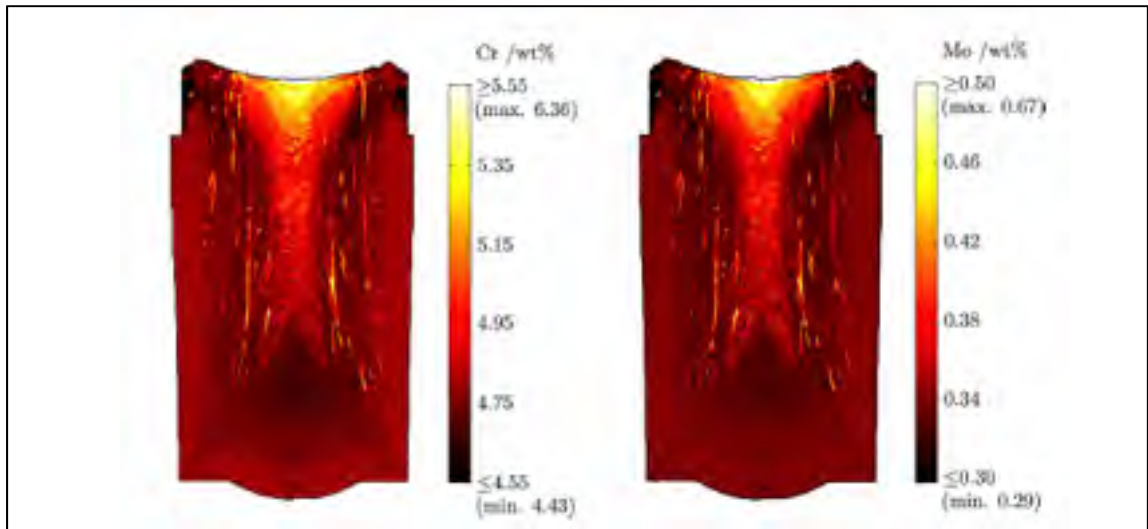


Figure 1.9 Cartographie de la concentration en Cr (gauche) et de la concentration de Mo (droite) à l'aide de la technique (Pickering, 2015)

Il est à noter également que la ségrégation de type « V » n'est pas visible alors que les chaînes de ségrégation de type « A » en Cr et en Mo sont bien marquées (Figure 1.9). Cependant, cette technique est très chère ce qui la rend très peu utilisée et elle ne permet pas de quantifier la macroségrégation du carbone qui est un des éléments les plus influents sur les propriétés mécaniques (Ed J. Pickering et al., 2015).

### 1.3.3 Microségrégation

La microségrégation est un phénomène engendrant une hétérogénéité chimique apparaissant au niveau des dendrites, lors de la solidification des aciers. Cette solidification est réalisée sur un intervalle entre deux températures : la température du liquidus ( $T_{liq}$ ) et la température du solidus ( $T_{sol}$ ). Au-dessus de  $T_{liq}$ , le mélange est entièrement liquide. Au-dessous de  $T_{sol}$ , le mélange est considéré comme entièrement solide. Les dendrites se forment donc dans cet intervalle de température et dans la zone « spatiale » de transition liquide-solide.

Les dendrites sont des cristaux formant une arborescence ramifiée ayant différentes formes au niveau microscopique (Figure 1.10). Ce phénomène est dû à une instabilité thermodynamique que l'on appelle surfusion (Guillemot, 2017; Reinhart, Nguyen-Thi, Billia, & Gastaldi, 2009). Cette partie sur la microségrégation se déploiera sur 5 points qui présenteront les principaux mécanismes qui influencent la microségrégation au sein de l'interface solide-liquide aux dendrites.

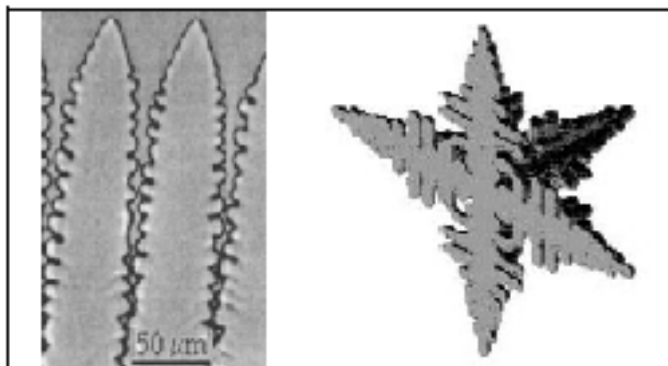


Figure 1.10 Illustration de la croissance des dendrites colonnaires (à gauche) et équiaxes (à droite) (Liu et al., 2005)

### 1.3.3.1 Dendrites et surfusion

Un alliage binaire ne se solidifie pas de façon isotherme et à composition constante, des variations de température et de composition plus ou moins marquées existent à l'interface dues aux phénomènes de diffusion et de convection. (Guillemot, 2017) Deux distances peuvent être caractéristiques de deux surfusions différentes (Figure 1.11). Tout d'abord, la surfusion thermique  $\Delta T_{th}$  sur la distance  $\delta_{th}^l$  qui est l'écart entre la température interfaciale  $T_{s/l}$  et la température  $T_{liq,\infty}$ , température pour laquelle le phénomène de diffusion (ou conduction) thermique cesse d'être prépondérant (Figure 1.11).

De même, il est possible de définir la surfusion chimique  $\Delta T_c$  sur une distance  $\delta_c^l$  qui est dû dans le cas d'alliages binaires à la différence de solubilité dans le solide qui est inférieure à celle dans le liquide, ainsi un rejet de soluté est opérant à l'interface solide (Figure 1.11). Dans ce cas, le coefficient de partage  $k_p$  du soluté  $i$  sera inférieur à 1. On pourra noter pour la suite que le coefficient de partage entre la phase solide et liquide peut s'écrire en fonction des pentes du liquidus  $m_{l,i}$  et du solidus  $m_{s,i}$  tel que :

$$k_{p,i}^{l/s} = \frac{m_{l,i}}{m_{s,i}} \quad (1.3)$$

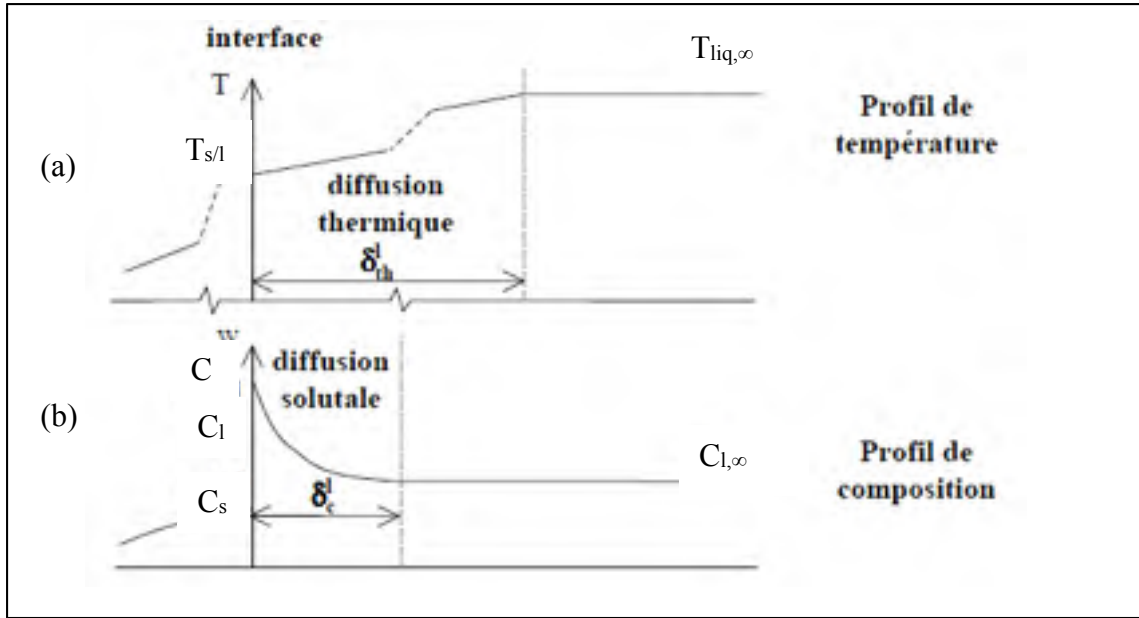


Figure 1.11 (a) Profil de la température et (b) profil de concentration à l'interface solide-liquide (Guillemot, 2017)

D'autres surfusions venant contrôler la cinétique des pointes de dendrites sont présentes comme la surfusion de courbure  $\Delta T_k$  due à la courbure de l'interface, plus celles-ci est incurvée plus il sera difficile d'y arracher des atomes (Guillemot, 2017).

Enfin, il existe la surfusion cinétique ( $\Delta T_v$ ), directement liée à la vitesse d'avancement du front de solidification, plus la vitesse d'avance de celui-ci sera élevée plus l'interface sera instable. Il est possible de voir avec l'étude d'Addad, 2007, que la forme des dendrites rentre directement en corrélation avec le gradient de solidification. Pour des vitesses faibles ( $0,2\mu m/s$ ), le front aura tendance à être plan alors qu'il va se compliquer pour des vitesses plus élevées dû à l'instabilité liées à la surfusion qui a été vus précédemment (Addad, 2007). Ainsi, par ce qui a été montré précédemment, la surfusion totale peut s'écrire sous la forme :

$$\Delta T_T = \Delta T_{th} + \Delta T_c + \Delta T_k + \Delta T_v = \Delta T_l - \Delta T_{l,\infty} \quad (1.4)$$



### 1.3.3.2 Morphologie des grains

La morphologie des grains a une influence sur la microségrégation. La zone équiaxe est la zone du lingot ayant des grains avec une croissance isotrope contrairement à la zone colonnaire ayant une croissance dans une direction privilégiée. Dans le cadre des lingots de grande taille, la microségrégation dans la zone équiaxe est plus intense que dans la zone colonnaire (Figure 1.12) (Addad, 2007).

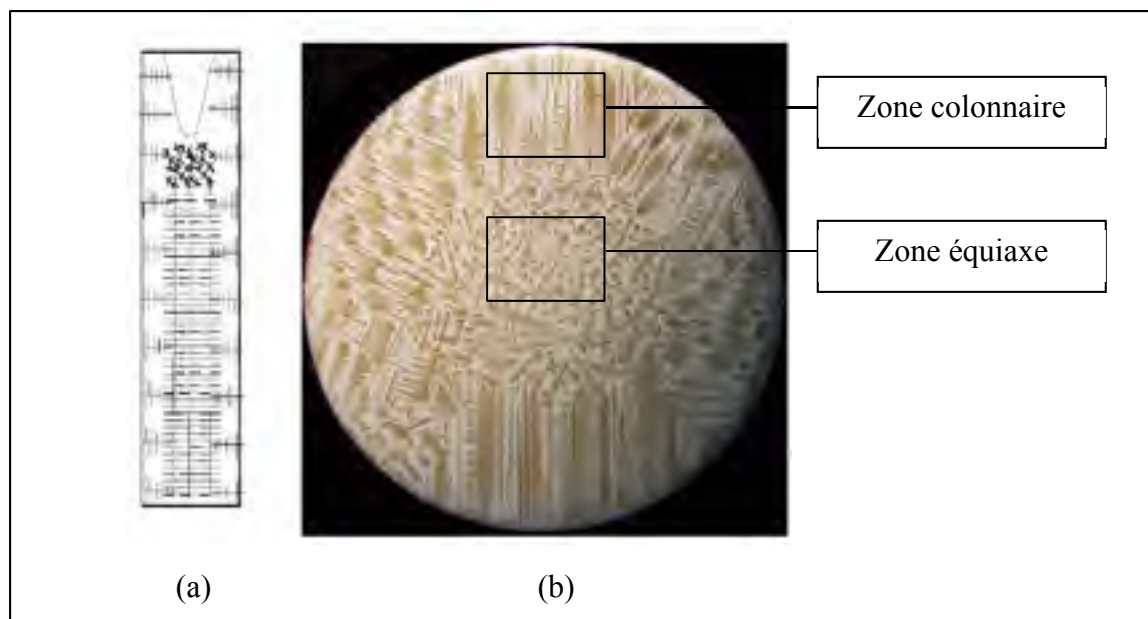


Figure 1.12 (a) Schéma du lingot et (b) coupe transversale de celui-ci avec transition colonnaire-équiaxe (Addad, 2007)

### 1.3.3.3 Chimie

Les éléments d'addition vont changer les limites de solubilité des solutés dans le Fer, et donc vont influencer la microségrégation. L'addition de carbone influence par exemple la microségrégation d'éléments comme Mn, Ni, Si, Cr, Mo, Sn, P et S dans l'acier. Cela peut se traduire par le coefficient de partage  $k_p$  qui va changer comme il est remarquable dans le travail de Morita ou le  $k_p$  du Cu et du Ni sont fortement influencés par la concentration de carbone

(Figure 1.13). Cette influence chimique peut se traduire également par la création de futures phases en présence influençant directement l'intensité de la microségrégation (Addad, 2007).

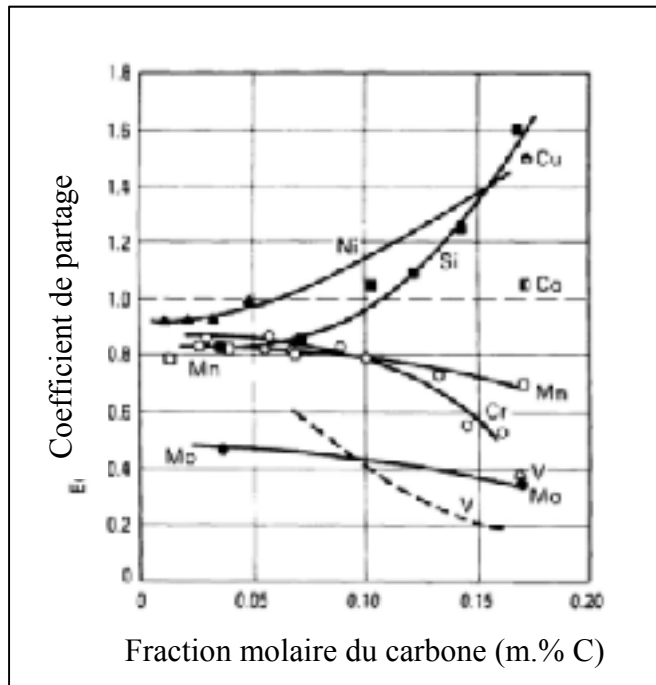


Figure 1.13 Influence du carbone sur le coefficient de partage (Addad, 2007)

Anticiper la microségrégation peut devenir très complexe lorsque l'on sait que les éléments d'additions peuvent interagir entre eux. Addad, 2007 souligne le fait que la concentration de carbone peut être influencée par la concentration de phosphore. La concentration de carbone est de 0.1% pour une concentration du phosphore de 0.018%, elle augmente à 0.3% pour une concentration de carbone de 0.04% (Addad, 2007). Ainsi la microségrégation positive du phosphore aura un effet catalyseur sur la microségrégation du carbone.

En général, et dans le cadre de cette étude, les interactions inter-éléments seront négligées devant l'effet de la teneur des éléments seuls, on parle de modèles binaires. Des coefficients du premier ordre seront donc appliqués pour chaque élément traduisant l'effet de ces derniers sur le liquidus. La formule ci-dessous est appliquée en approximant la pente du liquidus à une droite pour chaque élément (Transvalor, 2016) :

$$T_{liq} = T_{pur} - \sum m_{l,i} \cdot c_{0,i} \quad (1.5)$$

Avec la température du liquidus pour la base pure qui est ici le fer ( $T_{pur}$ ), le coefficient directeur de la droite du liquidus ( $m_{l,i}$ ) et la concentration nominale de chaque élément ( $c_{0,i}$ ) (Won & Thomas, 2001). Comme le coefficient directeur de la droite du liquidus d'un élément  $i$  avec le fer sera dépendant du coefficient de partage entre cet élément et le fer, le coefficient de partage sera donc influencé.

#### 1.3.3.4 Séquences de solidification

Les séquences de solidification représentent l'ordre dans lequel les différentes phases solides se forment à partir de l'état liquide et cela jusqu'à l'état complètement solide. Elles constituent des critères très importants qui affectent le comportement des éléments d'addition en microségrégation. De plus, la nature de la phase est étroitement liée à la chimie, comme vu précédemment. Si les éléments sont alphagène ou gammagène (respectivement favorisant la formation de la phase delta ou de la phase gamma), ils influenceront les phases en présence. Concernant les aciers, il est pertinent de regarder le diagramme Fe-C qui a une transformation péritectique à 1495°C. Au-dessous de 0.53 m.%, la phase qui commencera à se former lors de la solidification sera de la ferrite  $\delta$  et au-delà, de l'austénite  $\gamma$  (Figure 1.14). La séquence suivie affectera les propriétés du matériau directement liées aux modèles de microségrégation comme le coefficient de partage ( $k_p$ ), le coefficient de diffusion ( $D$ ), ou encore les pentes des limites de transformation comme le liquidus ou Ar4 (passage de la ferrite  $\delta$  à l'austénite). Dans la pratique, un acier faiblement allié (lors du rejet des solutés en amont du front de solidification) s'enrichira en éléments d'addition et pourra passer la concentration critique de 0.53 m.%, ce qui changera le mécanisme de solidification et influencera la microségrégation.

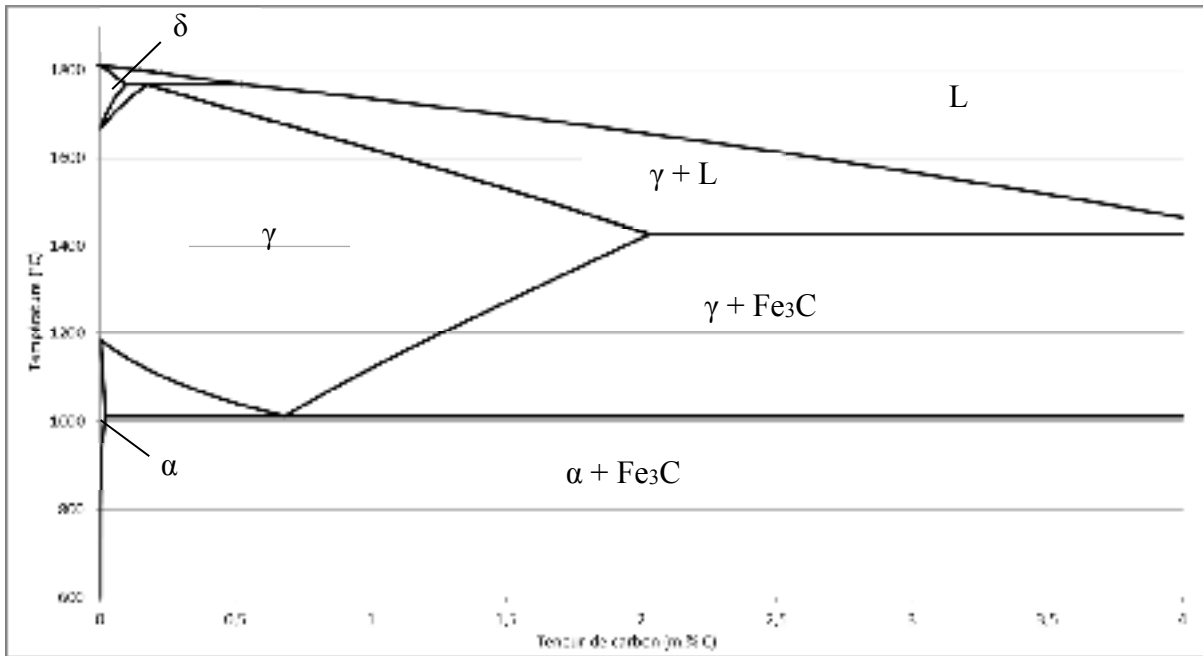


Figure 1.14 Diagramme de phases en équilibre thermodynamique Fe – C obtenu avec ThermoCalc®

Addad, 2007 prend l'exemple des aciers austénitiques inoxydables qui ont quatre séquences de solidification possibles pour finalement être en phase austénitique. Ces aciers connus pour être utilisés pour du soudage auront des séquences de solidification différentes déterminées par le ratio Cr/Ni. Dans le cadre de leurs travaux, Won & Thomas, 2001 insistent sur la manière de caractériser au mieux l'intervalle qui existe dû au changement péritectique de l'acier Fe-C. Le modèle utilisé dans le logiciel Thercast®, est donc (Transvalor, 2016):

$$T_{\text{start}}^{\delta/\gamma} = T_{\text{pur}}^{\delta/\gamma} - \sum n_i \cdot k_{p,i}^{\delta/l} \cdot c_{l,i}^{\delta} \quad (1.6)$$

Cette relation introduit la température de transition  $\delta/\gamma$  ( $T_{\text{start}}^{\delta/\gamma}$ ), la température de transition  $\delta/\gamma$  pour du fer pur ( $T_{\text{pur}}^{\delta/\gamma}$ ), le coefficient de partage entre la phase  $\delta$  et le liquide de chaque soluté ( $k_{p,i}^{\delta/l}$ ) et la concentration de chaque élément à l'interface solide/liquide dans la phase  $\delta$  ( $c_{l,i}^{\delta}$ ).

### 1.3.3.5 Vitesse de refroidissement

Avant tout, il est primordial de faire la différence entre la vitesse de refroidissement (ou de solidification sur l'intervalle de solidification) et le gradient de solidification. La première grandeur sera homogène à un différentiel de température par rapport au temps alors que la seconde sera homogène à un différentiel de température par rapport à une distance.

Les premiers à avoir montré l'effet de la vitesse de refroidissement sur la microségrégation sont Doherty et Melford (Won & Thomas, 2001). Ils ont démontré qu'en doublant ou triplant la vitesse de solidification, on diminuait significativement le taux de microségrégation ( $r$ ), notamment celui de la région interdendritique. Ensuite, afin d'identifier les vitesses de refroidissement dans l'intervalle de solidification (i.e. entre le liquidus et le solidus), la vitesse de refroidissement est considérée comme constante par Won (Won & Thomas, 2001). On définit donc un temps de solidification  $t_f$ :

$$t_f = \frac{T_{liq} - T_{sol}}{C_r} \quad (1.7)$$

## 1.4 Modélisation numérique de la macroségrégation dans les lingots de grande taille

La partie suivante sera consacrée aux modèles numériques qui régissent les lois de la macroségrégation lors de la solidification des lingots de grande taille dans les logiciels par éléments finis. Cette présentation sera bien évidemment axée sur les modèles employés par Thercast® qui est le logiciel utilisé dans le cadre de ce travail. Une première sous-partie sera consacrée aux modèles macroscopiques qui modélisent les phénomènes à cette échelle (i.e. les flux du métal liquide, les porosités, la contraction de métal, la formation des chaînes de ségrégation). Ensuite, les phénomènes microscopiques seront explicités afin de comprendre comment sont modélisés les phénomènes de diffusion, de perméabilité de la zone de transition

liquide-solide ou de microségrégation. Finalement une brève partie s'appuiera sur les méthodes de couplage des modèles, en définissant l'architecture de l'algorithme utilisé par Thercast®.

#### **1.4.1 Modèles macroscopiques**

Thercast® regroupent trois grands types d'algorithmes suivant ce que l'on veut simuler et le temps de calcul que l'on veut respecter : le modèle thermique, le modèle thermomécanique et le modèle de macroségrégation (Transvalor, 2016). Par exemple, Thercast® permet de modéliser la déformation du solide lors du refroidissement (modèle thermomécanique), ce modèle est indépendant du modèle de macroségrégation, surtout que le modèle thermomécanique est un modèle basé sur la loi des mélanges alors que le modèle de macroségrégation est basé sur le modèle volume élémentaire représentatif. La nuance entre ces deux types de modèle sera expliquée par la suite.

##### **1.4.1.1 Modèles thermique et thermomécanique**

Le modèle thermique utilisé par Thercast® s'appuie sur les principales lois de transfert de chaleur :

- Convection et radiation avec l'air ambiant,
- Conduction avec les autres sous-domaines (comme le moule par exemple),
- Conditions aux limites : température ou flux de chaleur imposé.

Ensuite, le modèle thermomécanique permet de simuler les lois de comportement du matériau coulé. Ces dernières peuvent être multiples et doivent être adaptées au comportement voulant être modélisé que cela soit élastique ou viscoplastique par exemple.

En plus d'avoir des équations pour coupler les phases (liquide et solide), celles-ci ont chacune leurs propres propriétés comme le souligne Liu, 2005. Dans ce cas, l'intérêt sera porté sur le fonctionnement du logiciel Thercast® qui considère le liquide comme Newtonien et la phase solide comme un mélange élasto-plastique avec la loi de Perzyna (Figure 1.15). Enfin, la zone

transitoire qui est la zone de transition liquide-solide a comportement visqueux modélisé avec la loi de Norton-Hoff (Figure 1.15) (Transvalor, 2016).

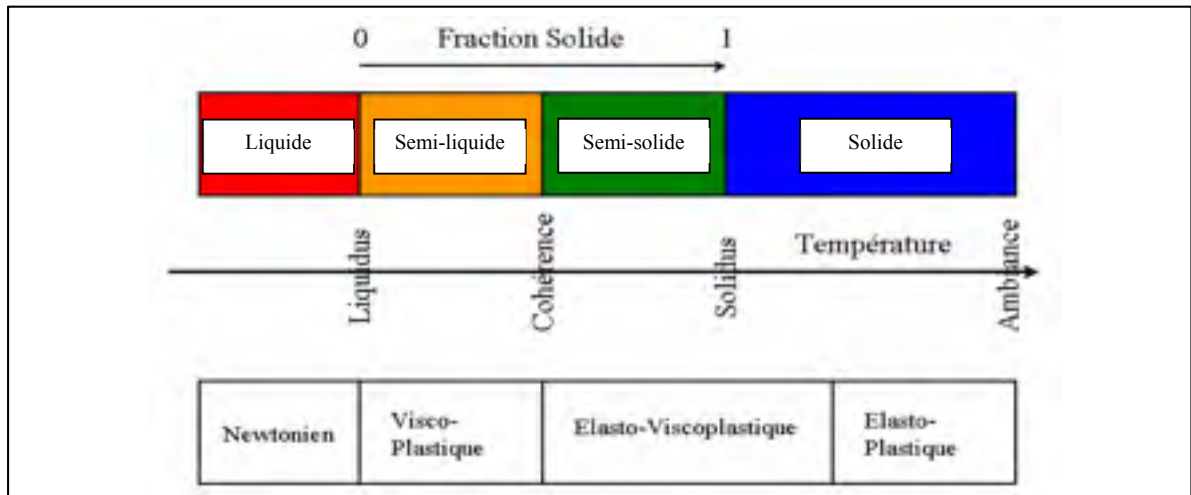


Figure 1.15 Schéma du comportement du matériau pour une analyse contrainte-déformation (Transvalor, 2016)

#### 1.4.1.2 Modèles de macroségrégation

Les modèles numériques actuels de macroségrégation sont des modèles macroscopiques ne cherchant pas forcément à représenter la géométrie de l'interface liquide et solide (Gouttebroze et al., 2005). Ces derniers intègrent des équations thermodynamiques afin de prendre en compte des phénomènes thermiques comme la diffusion ou la convection, et des phénomènes mécaniques modélisant les flux de métal liquide, les turbulences ou la sédimentation des grains équiaxes. De plus, il sera montré que plusieurs niveaux de modélisation sont utilisés suivant les phénomènes que l'on veut montrer (ex : sédimentation, flux d'oxyde, porosités).

Ces modèles reposent tous sur des équations de conservation comme :

- la conservation de la masse ;
- la conservation de la quantité de mouvement ;
- la conservation de l'énergie ;
- la conservation de la masse du soluté.

- **Prémices des modèles par éléments finis de la macroségrégation**

Le premier modèle imaginé pour simuler la macroségrégation est le modèle de Flemings & Nereo (Flemings & Nereo, 1967). Ce dernier considérait uniquement la ségrégation comme un phénomène résultant de la contraction du métal lors de la solidification. Ce modèle s'appuie sur la phase liquide et solide. La loi introduite alors est dite « local solute redistribution equation » (LSRE).

$$\frac{\partial f_l}{\partial C_l} = \left( \frac{1 - \beta}{1 - k_p} \right) \left( 1 + \frac{v \cdot \nabla T}{\frac{\partial T}{\partial t}} \right) \frac{f_l}{C_l} \quad (1.8)$$

Avec  $\beta = (\rho_s - \rho_l)/\rho_s$  qui est la contraction lors de la solidification, la fraction liquide ( $f_l$ ), le coefficient de partage ( $k_p$ ) et la vitesse du fluide normale aux isothermes ( $v$ ). Ce genre de modèle est très limité car il ne prend pas en compte le transport de masse (transport des solutés) par diffusion, ces derniers sont considérés comme conséquence des flux du mélange (E. J. Pickering, 2013). D'autres problèmes s'y ajoutent, comme la non-considération de la perméabilité de la zone de transition liquide-solide, la nécessité d'implanter des données expérimentales ou alors de faire l'hypothèse des gradients de température, et la non-prise en compte de la conservation de l'énergie lors du changement de phase donc une approximation non précise de la zone transitoire. (E. J. Pickering, 2013)

Des corrections ont été apportées au modèle de Fleming et al. (Flemings & Nereo, 1967). Cependant les modèles d'aujourd'hui s'inspirent de nouveaux modèles introduits à la fin des années 80 se basant sur la conservation énergétique. Deux modèles se distinguent dans la littérature reposant sur des hypothèses différentes notamment au niveau de la zone de transition liquide-solide. Le premier, développé par Bennon et Incropera (Bennon & Incropera, 1987) est le modèle continuum basé sur une loi de mélange et le deuxième est un modèle moyenné développé par Ni et Beckermann (Ni & Beckermann, 1991) basé sur la prise en compte de moyennes volumiques d'un volume représentatif.



- **Modèle continuum (loi des mélanges)**

Le modèle continuum ou loi des mélanges s'appuie sur plusieurs phases (ex : liquide et solide) qui peuvent être considérés comme des sous-systèmes avec des propriétés intrinsèques à chacun. Bennon et Incropera (Bennon & Incropera, 1987) sont les chercheurs qui ont développé ce modèle. Les équations de ce modèle reposent sur les hypothèses suivantes pour un modèle ne considérant que les phases liquide et solide (Gouttebroze et al., 2005) :

- La zone de transition liquide-solide est cohérente formant une zone indéformable et continue ;
- Aucune diffusion dans la phase solide ;
- Terme de Darcy (perméabilité) dans la zone de transition liquide-solide ;
- Le liquide est supposé comme Newtonien ;
- Les phases liquide et solide sont en équilibre local.

La principale limite de ce type de modèle est qu'il manque beaucoup de phénomènes comme la surfusion solutale, la contraction ou le mouvement du solide. De plus, ce type de modèle ne met pas en relation directe les phénomènes microscopiques et macroscopiques (E. J. Pickering, 2013). Beaucoup de rectifications, ont été faites après publication du premier article par Bennon et Incropera (Bennon & Incropera, 1987) ce qui a conduit à minimiser l'utilisation de ce genre de modèle (Gouttebroze et al., 2005; E. J. Pickering, 2013). Surtout par rapport au modèle du volume élémentaire développé pour la première fois par Ni et Beckermann (Ni & Beckermann, 1991), qui permet de mettre en relation la microségrégation et la macroségrégation en équation.

- **Modèle de volume élémentaire représentatif**

Ce modèle est particulièrement intéressant pour notre étude car c'est le modèle utilisé dans le logiciel Thercast® pour modéliser la macroségrégation (Transvalor, 2016). Le modèle du volume élémentaire représentatif (VER) a pour but d'utiliser des valeurs moyennes des paramètres dans un volume élémentaire représentatif afin de ne pas avoir de variation locale à

petite échelle. L'échelle la plus courante pour un VER est souvent proportionnelle à quelques dendrites, il faut être capable de différencier les deux phases afin d'avoir une meilleure pertinence dans les propriétés du mélange moyennées. Sur la Figure 1.16, deux phases apparaissent dans le volume étudié  $\Delta V$ , les phases  $\alpha$  et  $\beta$  qui pourraient être assimilées à la phase solide et liquide. Les propriétés moyennes dans ce volume pourront être donc calculées.

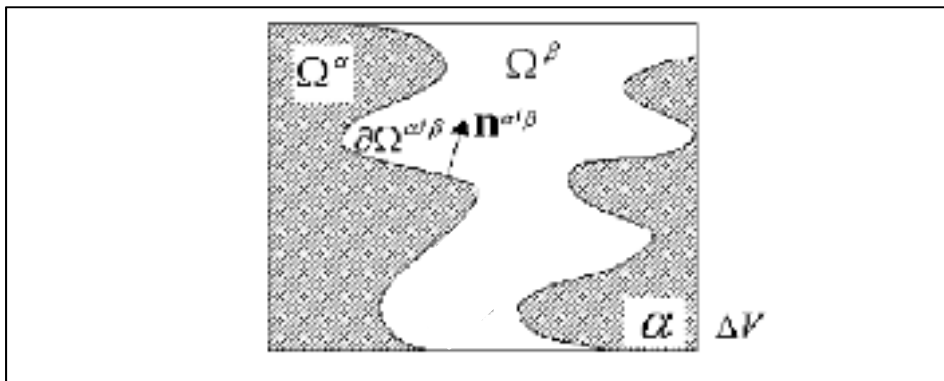


Figure 1.16 Élément de volume représentatif (Liu, 2005)

Ainsi, il est possible de faire le lien entre l'échelle microscopique et macroscopique. Afin de mieux comprendre le fonctionnement du modèle de VER, un modèle à deux phases (liquide et solide) est utilisé sur un lingot de 231 t (Tu, Shen, & Liu, 2014). Le fonctionnement de ce type de modèle repose principalement sur des équations de conservation (masse, énergie, quantité de mouvement, etc.) entre les équations respectives aux deux phases.

Des modélisations plus détaillées considèrent l'existence d'un nombre de phases plus significatives différenciant les textures des phases solides par exemple, les grains équiaxes et la phase colonnaire dendritique (Wu et al., 2013). Des modèles comme cela, permettent de mettre en valeur de nouveaux phénomènes qui n'auraient pas été observés sur un modèle à deux phases. Il est possible de différencier la morphologies des grains, de considérer la sédimentation des grains équiaxes dans le bas du lopin et enfin de prendre en compte les branches de ségrégations de type « A » (Wu et al., 2013). Bien qu'il y ait des modèles de plus en plus complexes, des phénomènes demeurent non-simulés comme des effets de surchauffe où la phase solide germe à plusieurs reprises, les chaines « V » de ségrégation qui sont notamment dues à la contraction volumique ou encore, la morphologie des dendrites qui n'est

pas prise en compte (Wu et al., 2013). Ainsi, ces modèles macroscopiques sont très souvent limités à deux phases sans faire la différence entre des grains équiaxes ou colonnaires, ils tentent de faire apparaître les branches de ségrégation « A » sans pour autant y arriver avec succès avec des tailles de mailles trop grandes (E. J. Pickering, 2013). D’après ce que conclut Pickering et al., les modèles capables de résoudre des phénomènes de la taille du nanomètre seront faisables uniquement en 2050 (E. J. Pickering, 2013). De plus, les industriels utilisent des logiciels commerciaux, bien souvent trop chers, ne possédant pas les caractéristiques utilisées dans le cadre de la recherche (Gouttebroze et al., 2005; E. J. Pickering, 2013).

Des subterfuges existent pour contourner ce problème de limite technique en minimisant les tailles de lingot, en utilisant la symétrie axiale des modèles ou en codant des maillages adaptatifs (Gouttebroze et al., 2005). Ces techniques seront d’ailleurs utilisées dans le cadre de cette étude et une discussion sera apportée sur ce qu’elles apportent et les conclusions qui peuvent en être tirées.

#### **1.4.1.3 Paramètres du matériau**

En plus des équations, le logiciel utilise des tables de données qui permettent d’avoir les caractéristiques intrinsèques au matériau, ces propriétés sont les paramètres thermophysiques (chaleur spécifique, enthalpie de transformation et diffusion thermique), thermodynamiques (viscosité, module d’Young, coefficient de Poisson) et les paramètres liés à la macroségrégation (pente du liquidus, coefficient de partage, coefficient d’expansion, distance interdendritique secondaire). Gouttebroze (Gouttebroze et al., 2005), lors de la simulation de la solidification d’un lingot de grande dimension a dû évaluer certains paramètres caractéristiques de l’alliage du lingot, du moule et du réfractaire (Tableau 1.1).

Tableau 1.1 Exemple des caractéristiques données à du métal  
(Gouttebroze, 2005)

Masse volumique de référence $\rho_0$	$7060 \text{ kg m}^{-3}$
Conductivité thermique $\kappa$	$30 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Chaleur massique $c_p$	$500 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Viscosité dynamique $\mu$	$4.2 \cdot 10^{-3} \text{ Pa s}$
Coefficient de dilatation thermique $\beta_T$	$8.85 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$
Chaleur latente de fusion $\Delta h_L$	$3.09 \cdot 10^5 \text{ J kg}^{-1}$
Température de fusion $T_0$	$1538 \text{ }^\circ\text{C}$
Pente du liquidus $m$	$-80 \text{ K (wt\%)}^{-1}$
Coefficient de partition $k_p$	0.18
Espacement dendritique secondaire $\lambda_2$	$100 \text{ }\mu\text{m}$
Coefficient de dilatation solutal $\beta_c$	$4.16 \cdot 10^{-2} \text{ (wt\%)}^{-1}$
Coefficient de diffusion solutal $D_c$	$10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$
Température initiale $T_0$	$1515 \text{ }^\circ\text{C}$
Transfert thermique avec le moule	$500 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$
Concentration initiale $c_0$	0.38 wt%

Dans Thercast® par exemple, la chaleur latente ou la densité sont dépendantes de la température, ainsi, ces données sont rangées dans des tables lues par le logiciel. Cependant, beaucoup de paramètres sont considérés constants comme le SDAS et le coefficient de partage. La partie expérimentale de cette étude développera la stratégie adoptée pour déterminer ces paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement et de la composition chimique. Toutes ces données se présentent sous la forme d'un fichier texte qui sera lu par Thercast®, c'est dans ce fichier que les données dépendantes de la vitesse de refroidissement seront implémentées.

## 1.4.2 Modèles microscopiques complémentaires

### 1.4.2.1 Microségrégation

Les modèles de microségrégation sont primordiaux pour la bonne simulation de la macroségrégation car il y a directement un lien entre les deux domaines que cela soit expérimental ou numérique (Figure 1.17). Le mimétisme du phénomène est clairement illustré par Liu (Liu, 2005) avec le schéma ci-dessous.

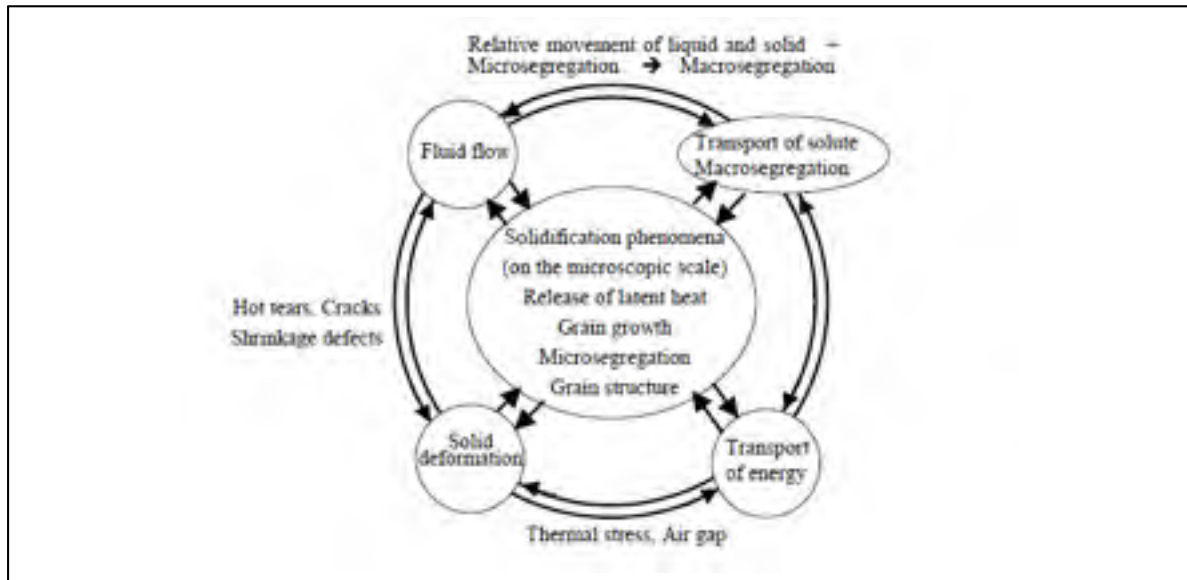


Figure 1.17 Interactions entre les phénomènes macroscopiques et microscopiques pendant la solidification d'un lingot (Liu, 2013)

De multiples modèles ont été mis en place pour différents alliages, avec différentes quantités d'éléments ajoutés, qu'ils soient binaires, tertiaires ou avec plus d'éléments (Won & Thomas, 2001). Les modèles de microségrégation reposent principalement sur la mise en commun entre la teneur en éléments d'addition et la fraction solide (Won & Thomas, 2001). Cette relation cependant contient plusieurs modèles et hypothèses comme :

- Hypothèses sur l'équilibre thermique (ou thermodynamique) ;
- Hypothèses sur les longueurs de diffusion ;
- Modélisation de l'évolution de la concentration ;
- Modélisation de l'évolution du coefficient de partage ;
- Modélisation des surfaces de contact ;
- Modélisation de croissance de dendrite.

Les deux principaux modèles de microségrégation sont Scheil et Levier (E. J. Pickering, 2013). La divergence des deux modèles repose sur la diffusion dans la phase solide. Ensuite viendront

les modèles adaptatifs agrémentés de nouvelles hypothèses afin d'établir des diffusions partielles dans la phase solide.

- **Modèle de Scheil**

L'équation 1.9 considère une diffusion totale dans la phase liquide et aucune diffusion dans la phase solide.  $C_{l,i}$  est la concentration dans le liquide pour un élément  $i$ ,  $C_{o,i}$  est la concentration nominale qui existe pour ce même élément,  $f_s$  est la concentration volumique solide et  $k$  le coefficient de partage.

$$c_{l,i} = c_{o,i} \cdot (1 - f_s)^{k_{p,i}-1} \quad (1.9)$$

- **Modèle de loi de Levier**

La loi de levier (Équation 1.10) est la loi antagoniste à Scheil car elle considère un équilibre total en intégrant une diffusion complète dans la phase liquide ainsi que dans la phase solide. Cette loi est d'ailleurs quelques fois appelée la loi d'équilibre. Ces deux modèles sont des modèles limités, car ils considèrent un équilibre parfait ou alors un non-équilibre dans le solide. Le modèle de Scheil sera intéressant pour des applications avec une vitesse de solidification très rapide telle que le soudage où les vitesses de solidification peuvent atteindre  $10^2$  °C/s (Liu, 2005). La loi de Levier par ailleurs aura un intérêt pour des vitesses de refroidissement plus lentes. D'ailleurs, dans le cadre de ce travail avec Thercast®, la diffusion de l'élément carbone sera prise en considération dans la phase solide avec le modèle de Levier.

$$c_{l,i} = \frac{c_{o,i}}{f_s(k_{p,i} - 1) + 1} \quad (1.10)$$

- **Modèle de Brody et Flemings**

Le modèle de Brody et Flemings (Won & Thomas, 2001) (Équation 1.11) semble le plus représentatif des modèles traduisant une diffusion existante après solidification appelée

« back-diffusion ». (Won & Thomas, 2001) Cette dernière se situe donc dans la phase solide. Le problème demeurant est de quantifier celle-ci.

$$c_{l,i} = c_{o,i} \cdot \left(1 - (1 - \beta \cdot k_{p,i}) \cdot f_s\right)^{(k_{p,i}-1)/(1-\beta \cdot k_{p,i})} \quad (1.11)$$

Le coefficient  $\beta$  représente la diffusion solide. Si l'hypothèse que la loi de solidification est parabolique est faite, alors  $f_s = X \cdot \sqrt{t}$  et  $X = \frac{\lambda_2}{2}$ , on a (Gouttebroze et al., 2005):

$$\beta = 2 \frac{D_s t_f}{X^2} \quad (1.12)$$

Avec le coefficient de diffusion ( $D_s$ ), le temps de solidification ( $t_f$ ) et, l'espace interdendritique secondaire ( $\lambda_2$ ) (partie 1.5.1.1). De plus, Clyne-Kurz propose un modèle très populaire (Won & Thomas, 2001). Dans celui-ci, le coefficient de diffusion prend une forme exponentielle comme suit:

$$\beta = 2 \cdot \left(1 - \exp\left(-\frac{1}{\alpha}\right)\right) - \exp\left(-\frac{1}{\alpha}\right) \quad (1.13)$$

Les modèles de microségrégation semi-empiriques peuvent être très pertinents dans leurs résultats si leur utilisation est justifiée soigneusement notamment sur le choix des hypothèses (Won & Thomas, 2001). Il faut être très prudent sur ces modèles car comme le montrent Voller & Beckermann, 1999, des modèles trop complexes comme Brody-Flemings et Oknaka ne sont pertinents que dans le cas d'une loi de température parabolique en fonction du temps. Dans le cas présent ou celui de Won, avec une vitesse de refroidissement constante, ce modèle n'est pas forcément adapté (Won & Thomas, 2001).

### 1.4.2.2 Perméabilité

La perméabilité traduit la capabilité du métal liquide à se mouvoir dans la zone de transition liquide-solide (Figure 1.18).

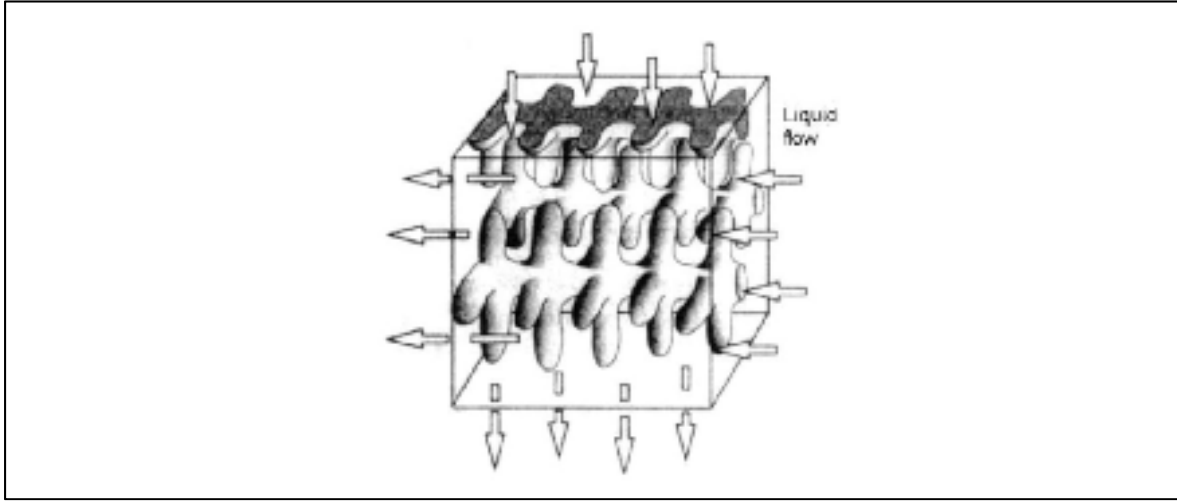


Figure 1.18 Schéma d'écoulement du liquide à travers la structure dendritique (Flemings, 1974)

Ainsi, la perméabilité ( $K$ ) est un paramètre qui intervient uniquement dans la zone de transition liquide-solide entre le liquide et le solide. Il existe plusieurs modèles comme le modèle de Kozeny-Carman (1960), West (1985), Poirier (1987), Xu (1989), Oldenburg (1992) et Bhat-Poirier-Heinrich (1995) (Gouttebroze et al., 2005). Selon Gouttebroze (Gouttebroze et al., 2005), il est très difficile de sélectionner un modèle plus qu'un autre car chacun fait intervenir des paramètres différents. Dans le cas de cette recherche, le modèle de Kozeny-Carman sera choisi tel que (utilisé dans l'algorithme de Thercast®) :

$$K = \frac{(1 - f_s)^3 \lambda_2^2}{180 f_s^2} \quad (1.14)$$

Dans ce modèle, l'espace interdendritique secondaire ( $\lambda_2$ ) est considéré, cet espace est la distance entre deux dendrites secondaire, ce paramètre est défini en partie 1.5.1.1.



### **1.4.3 Stratégie de résolution des modèles**

Les modèles de couplage permettent d'optimiser au mieux le temps de calcul. En effet, les modèles utilisés font apparaître des variables comme la fraction liquide, les vitesses du fluide, ou la concentration moyenne, l'apparition successive de ces derniers implique un couplage fort des équations. Des méthodes de calculs numériques furent développées afin de diminuer le temps de calcul. Généralement, le déroulement d'un incrément de calcul se déroule dans l'ordre : conservation d'énergie, conservation de quantité de soluté, la conservation de quantité de mouvement, le remaillage puis le modèle de microségrégation (Gouttebroze et al., 2005).

## **1.5 Étude des paramètres caractéristiques du matériau lors de la solidification d'un acier faiblement allié**

Comme indiqué précédemment, les propriétés du matériau ont besoin d'être implémentées dans Thercast®. Cependant leur définition et leurs influences sur les phénomènes de microségrégation et de macroségrégation ont besoin d'être explicités. Une première partie sera consacrée à expliciter le choix des paramètres étudiés. Ensuite, l'objectif sera de définir ces paramètres et de faire l'état de l'art des connaissances sur le comportement de ces derniers en fonction de la vitesse de refroidissement. Puis, la dernière partie sera axée sur les appareils existants permettant de mesurer l'évolution des paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement.

### **1.5.1 Étude de l'évolution des paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement**

Avant d'étudier l'influence de la vitesse de refroidissement sur les paramètres, il est important de bien la définir, car comme le note judicieusement Addad, 2007, la différence doit être faite entre vitesse de refroidissement et gradient de refroidissement. Nombre d'auteurs ont utilisé ces deux grandeurs afin de caractériser la solidification, notamment avec la solidification unidirectionnelle (Addad, 2007; Ferreira, de Melo, & Ferreira, 2015; Jacobi & Wünnenberg, 1999).

### 1.5.1.1 SDAS

Les espaces interdendritiques sont de plusieurs types (primaire ( $\lambda_1$ ), secondaire ( $\lambda_2$ ), tertiaire ( $\lambda_3$ ), etc...). Le SDAS (« secondary dendrite arm spacing ») ( $\lambda_2$ ) est appelé en français, l'espace interdendritique secondaire. L'espace interdendritique désigne la distance qui existe entre deux branches de dendrites secondaires (Figure 1.19).

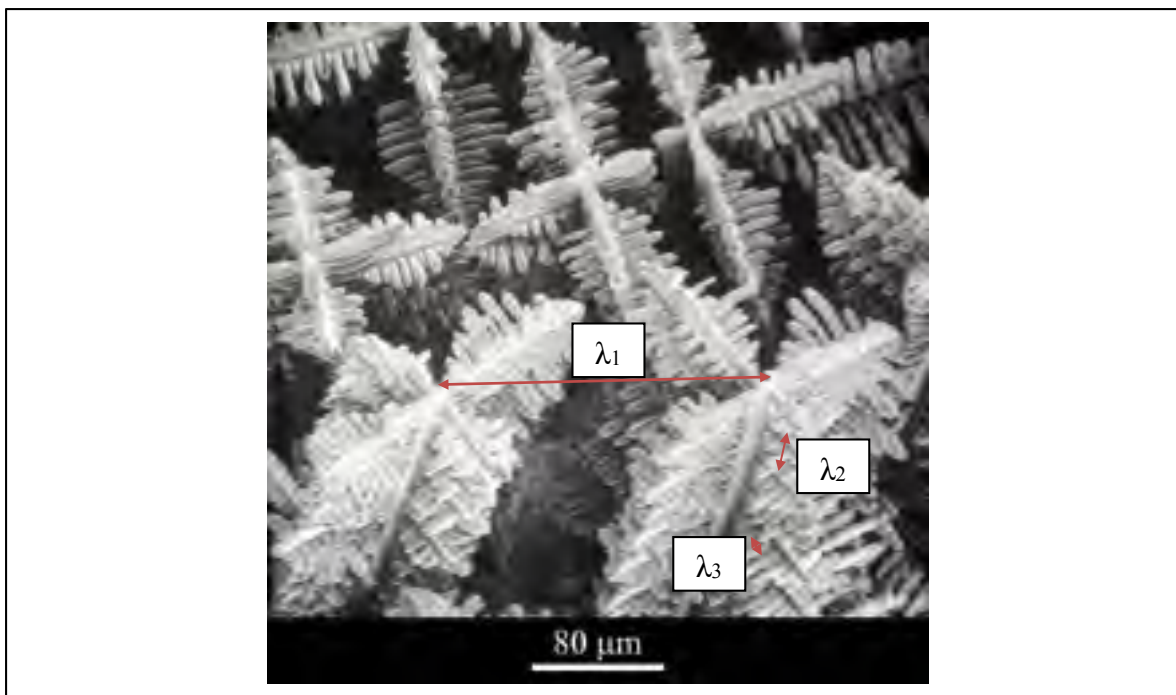


Figure 1.19 Micrographie au MEB et identification des espaces interdendritiques ( $\lambda_1$ ) primaires, ( $\lambda_2$ ) secondaires et ( $\lambda_3$ ) tertiaires (Cambridge)

Cette structure ramifiée dépend de la cinétique de cristallisation lors du refroidissement du matériau. L'analogie pourrait être donnée à un flocon de neige se cristallisant dans une atmosphère plus ou moins chaude. Généralement, les publications sont développées sur des solidifications unidirectionnelles permettant de simplifier le problème à une seule direction (Wu, Zheng, Kharicha, & Ludwig, 2016). Jacobi & Wünnenberg, 1999; Senk, Engl, Siemon, & Stebner, 1999; Weisgerber, Hecht, & Harste, 1999 ont publié des lois de solidification sur les vitesses de refroidissement. Senk, Engl, Siemon, & Stebner, 1999, par exemple,

caractérisent les solidifications dans diverses géométries comme un lingot de 150 mm ou des « slabs » très fins de 60 et 12 mm de largeur. Ils identifient une « surface froide » qui va définir la direction de solidification et vont mesurer la vitesse de refroidissement lors de la solidification à des distances données par rapport à cette surface (Figure 1.20). A partir du temps de solidification ( $t_f$ ), de la vitesse de refroidissement moyenne lors de la solidification ( $C_r$ ), et du gradient de de solidification ( $V$ ), le SDAS a été mesuré ce qui permis de déterminer une loi puissance par la suite. Il est possible de constater que pour les 4 géométries étudiées, le SDAS varie de 10  $\mu\text{m}$  à 300  $\mu\text{m}$  pour des distances de 0.2 à 70 mm (Figure 1.20).

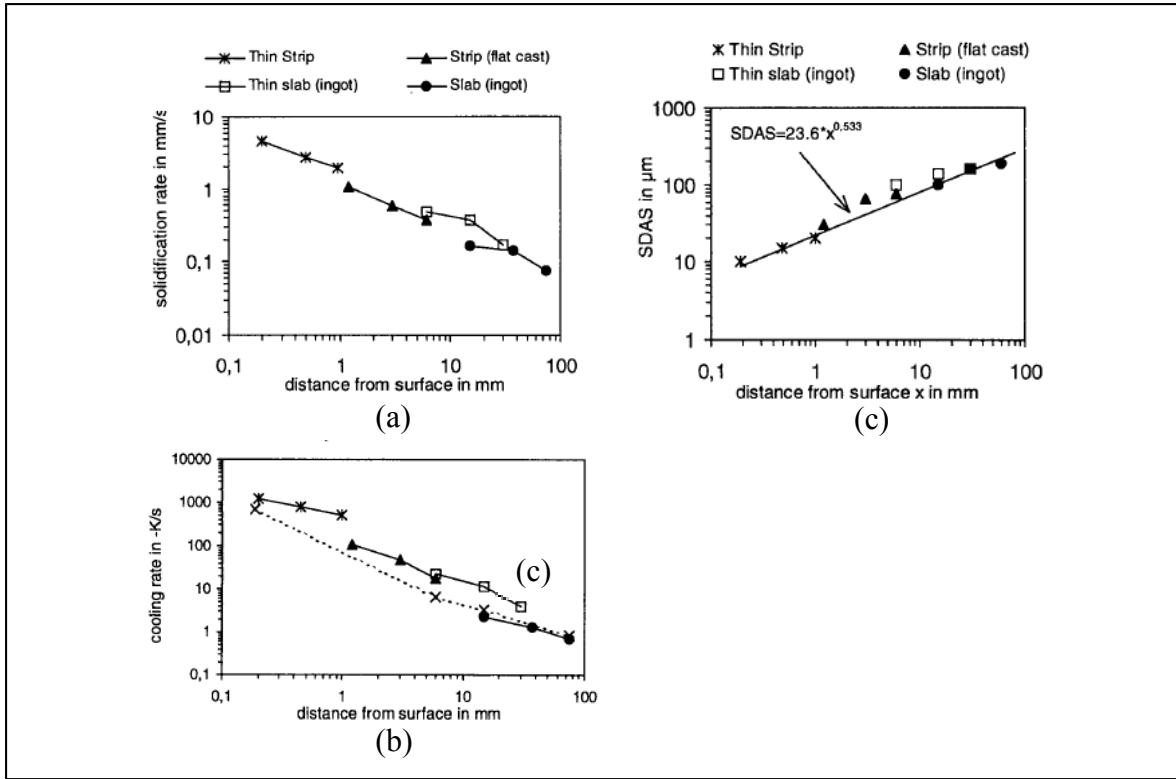


Figure 1.20 (a) Gradient de refroidissement en fonction de la distance par rapport à la surface froide, (b) Vitesse de refroidissement en fonction de la distance de la surface froide, (c) SDAS en fonction de la distance de la surface froide. (Senk et al., 1999)

D'autres auteurs comme Weisgerber, Hecht, & Harste, 1999, illustrent dans leur article, des lois d'évolution de l'espace interdendritique secondaire en fonction des trois critères, la vitesse de refroidissement, le gradient de solidification et la distance de la surface froide (Weisgerber, Hecht, & Harste, 1999). Cependant ces comportements peuvent varier en fonction de la teneur en carbone que contient l'acier.

Won & Thomas, 2001 se sont intéressés à modéliser le comportement de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la vitesse de refroidissement mais à la différence des autres auteurs, la teneur de carbone a été considérée ce qui a permis de développer la loi suivante à deux paramètres, la vitesse de refroidissement ( $C_r$ ) et la teneur en carbone ( $C_c$ ) :

$$\lambda_2 = (169.1 - 720.9 \cdot C_c) \cdot C_r^{-0.4935} \quad \text{for } 0 \leq C_c \leq 0.15 \quad (1.15)$$

$$\lambda_2 = 143.9 \cdot C_r \cdot C_C^{(0.5501-1.996)} \quad \text{for } 0.15 \leq C_C$$

Cette

relation est bien sûr empirique avec la vitesse de refroidissement ( $C_r$ ) et la teneur en carbone ( $C_C$ ). On peut constater que l'évolution de l'espace interdendritique n'est pas forcément monotone en fonction de la teneur en carbone, c'est une conséquence de différents mécanismes de solidification. En effet, si le taux du carbone varie, le domaine de phase change. Won & Thomas, 2001 montrent que pour une solidification primaire en ferrite  $\delta$ , le  $\lambda_2$  décroît. (Figure 1.21) Après l'ajout de carbone et une concentration de carbone supérieure à 0.15 m.% C, le comportement du SDAS connaît une loi parabolique avec un pic à 0.6 m.% C. (Figure 1.21) Cependant l'interprétation de cette loi doit être réalisée avec précaution car celle-ci a été déterminée à partir de la synthèse d'articles utilisant des lois empiriques ayant leurs propres hypothèses. De plus, les vitesses de refroidissement des points d'interpolation se trouvent entre 0.1 et 5 °C/sec alors que Won & Thomas, 2001 tracent une courbe pour 0.03°C/sec qui n'est pas une courbe d'interpolation. (Figure 1.21) Dans les lingots de grande taille, les vitesses de refroidissements comme il sera montré par la suite, sont majoritairement entre de 0.01°C/s et 0.001°C/s. Ainsi la loi de Won est limitée et ne concerne qu'une zone restreinte du lingot de 40 t. (Figure 1.21)

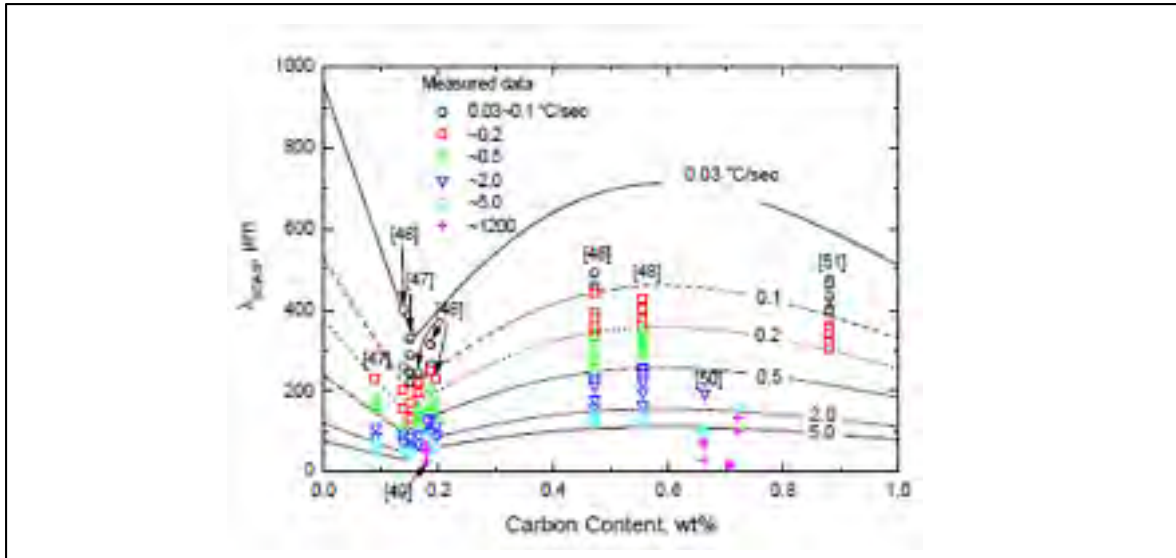


Figure 1.21 Évolution de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la teneur en carbone à différentes vitesses de refroidissement (Won & Thomas, 2001)

### 1.5.1.2 Liquidus, solidus et chaleur latente de fusion

Des modèles numériques se basant sur l'équilibre thermodynamique des phases existent comme le fait le logiciel JMatPro® utilisé dans le cadre de cette étude, mais il sera montré par la suite que ces modèles fonctionnent que pour les transformations solide-solide. Ainsi, la stratégie est de comprendre au mieux comment il est possible de mesurer expérimentalement l'influence de la vitesse de refroidissement sur l'intervalle de solidification.

- **Solidus**

Le solidus est la température seuil à partir de laquelle la phase solide existe seule. Won & Thomas, 2001 se sont penchés sur le comportement de trois aciers de composition 0.34 Si - 1.52 Mn - 0.012 P - 0.015 S (%m) avec des teneurs en carbone différentes, 0.044 m.% C, 0.18 m.% C et 0.8 m.% C, afin d'analyser indépendamment, les vitesses de refroidissement et la teneur en carbone. Tout d'abord, le SDAS est fixé, pour chaque teneur de carbone en fonction de la vitesse de refroidissement et il est ensuite possible de tracer les courbes de fraction de phase en présence en fonction de la température. (Figure 1.22) Le modèle utilisé par le

chercheur s'appuie sur le modèle de Clyne-Kurz extrapolé en prenant en compte la croissance des dendrites, la croissance du grain et la transformation  $\delta/\gamma$  (Won & Thomas, 2001).

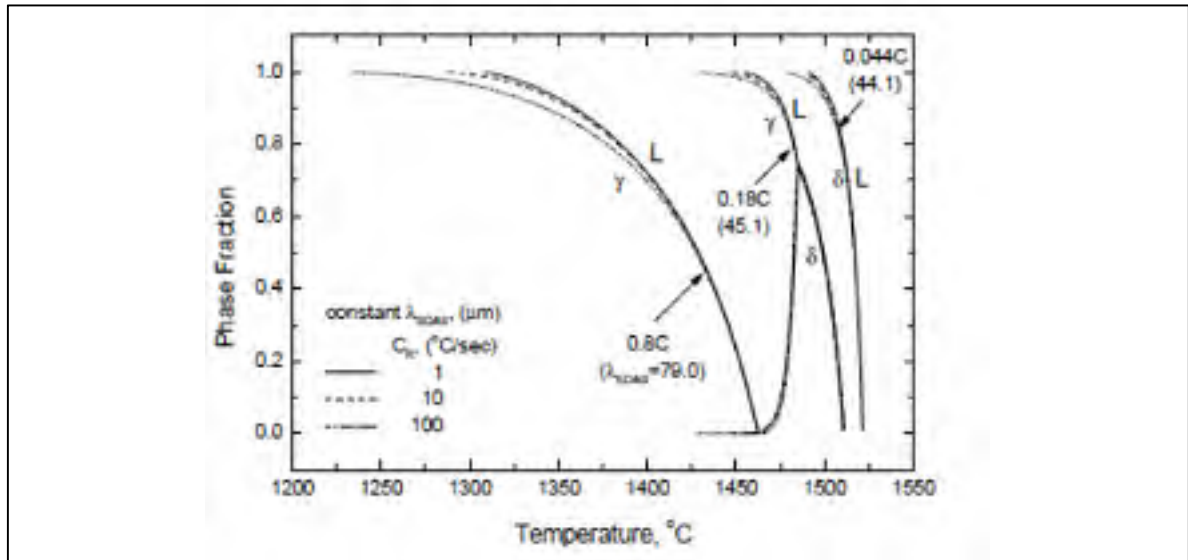


Figure 1.22 Effet de la vitesse de refroidissement sur les changements de phase pour 3 aciers (Won & Thomas, 2001)

Comme le montre la loi de Won (Équation 1.15), il existe un phénomène de couplage entre la teneur en carbone et la vitesse de refroidissement, ainsi, ne s'intéresser qu'à la vitesse de refroidissement serait une erreur. Il est intéressant de constater que la variation est négligeable si les deux phénomènes sont considérés (Figure 1.23), en effet la fraction de phase est quasiment la même entre une vitesse de refroidissement de  $1^{\circ}\text{C/s}$  et  $100^{\circ}\text{C/s}$ . D'après Won (Won & Thomas, 2001), l'abaissement du solidus causé par l'accroissement de la vitesse de refroidissement est compensé par l'accroissement du solidus lorsque le SDAS augmente avec l'accroissement de la vitesse de refroidissement. Il est possible de le constater sur le relevé avec des lignes de transition entre phases presque confondues (Figure 1.23) contrairement à la Figure 1.22 où la transition de phase est décalée notamment à des températures plus basses.

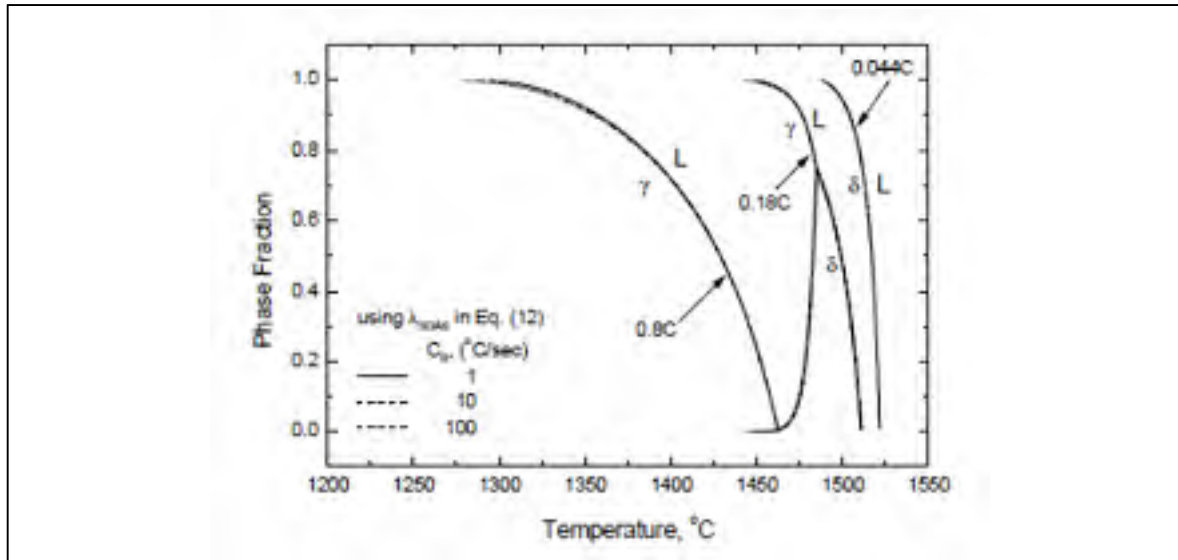


Figure 1.23 Effet de la vitesse de refroidissement et SDAS sur les changements de phases pour 3 aciers (Won & Thomas, 2001)

D'autres auteurs, comme Bleckmann et al., 2015, mesurent directement à l'aide de l'analyse thermique, l'effet cinétique de la vitesse de refroidissement sur des aciers fortement allié avec 1 m.% de C. Le comportement du solidus par rapport à la vitesse de refroidissement peut être interpolé par une droite affine (Figure 1.24).

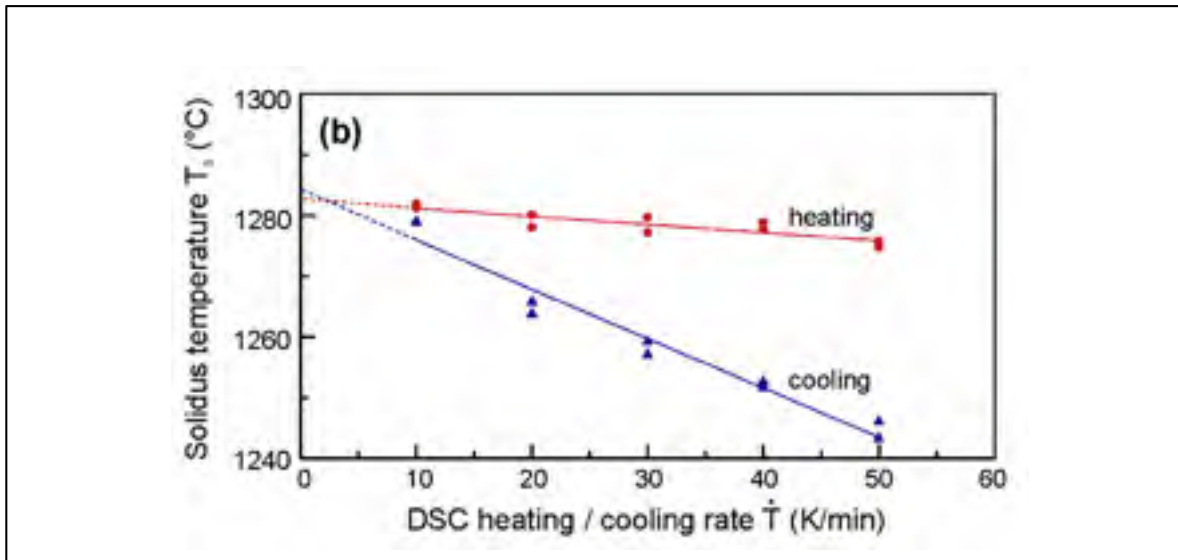


Figure 1.24 Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur le solidus d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015)



- **Liquidus**

Le liquidus peut être reconnu comme la température antagoniste au solidus en étant la température seuil au-delà de laquelle la phase liquide existe seule. Celui-ci est également dépendant de la vitesse de refroidissement comme le montre Bleckmann et al., 2015 sur un acier fortement allié (Figure 1.25).

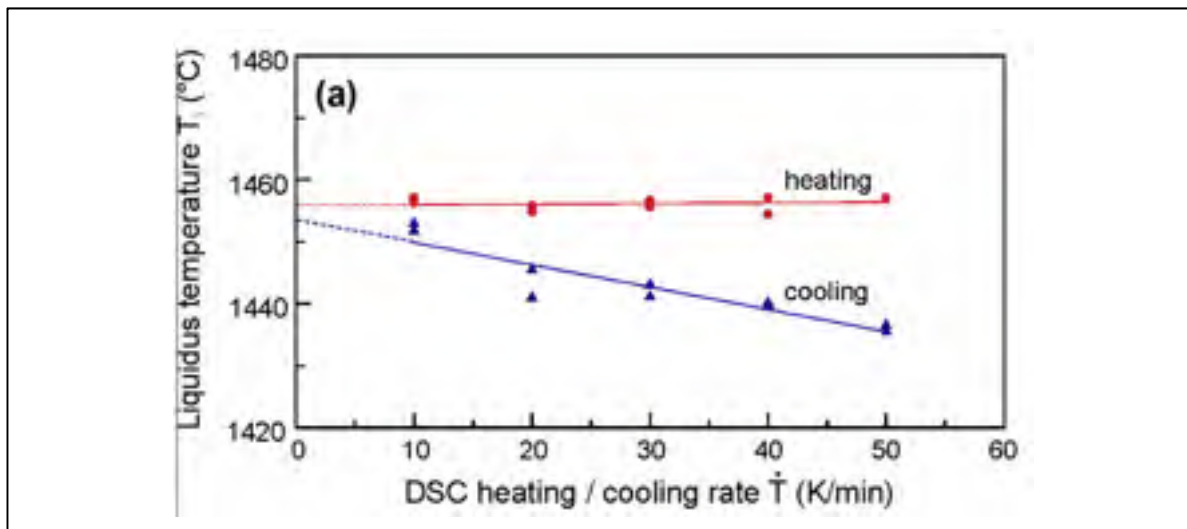


Figure 1.25 Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur le liquidus d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015)

De plus, il est intéressant de constater que l'intervalle de solidification est d'autant plus long que l'on accroit la vitesse de refroidissement (Figure 1.26).

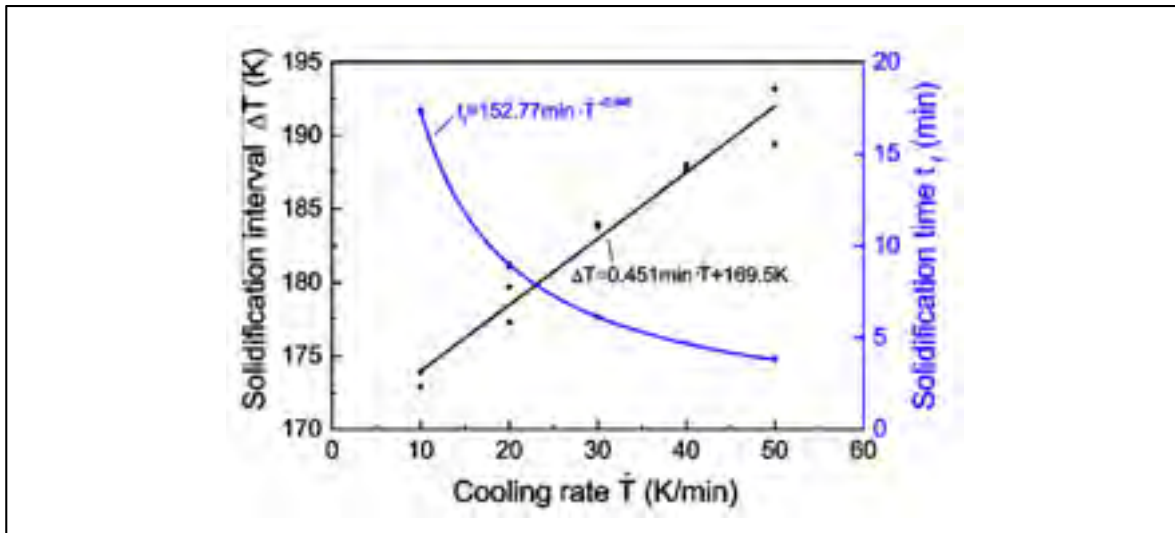


Figure 1.26 Influence de la vitesse de chauffe et de refroidissement sur l'intervalle de solidification d'un acier FeCrVC (Bleckmann et al., 2015)

Bleckmann, grâce à ces interpolations linéaires, parvient à prédire le liquidus et le solidus à l'équilibre en comparant celui-ci à l'estimation à l'équilibre thermodynamique sur le logiciel JmatPro®. Cependant, certaines questions peuvent se poser quant à la précision des mesures. Par exemple, l'écart entre le liquidus prédit et mesuré est de 8°C (soit 0,5 % d'erreur relative) et 6°C pour le solidus (soit 0,6 % d'erreur relative) (Tableau 1.2) (Bleckmann et al., 2015). Ces imprécisions peuvent être expliquées par le logiciel thermodynamiques JMatPro® mais également par l'imprécision des mesures à haute température. De plus, il est important de noter les problèmes rencontrés au niveau du changement de composition chimique durant l'essai. En effet, l'hypothèse est faite que cela est dû aux dégagements de carbone. Des essais ont été réalisés à l'aide du procédé d'extraction à chaud de gaz sur l'échantillon avec 1 m.% C, pour des vitesses de chauffe et de refroidissement de 20 et 40 K/min afin de quantifier les dégagements gazeux. Les compositions finales étaient respectivement de 0.48 m.% C et 0.8 m.% C. Plus la vitesse de refroidissement est faible, plus le changement de composition chimique est important. Celui-ci est tel que la première phase à se former peut être de la ferrite  $\delta$  alors qu'à l'origine l'échantillon doit commencer à se solidifier en austénite.

Tableau 1.2 Comparaison des liquidus et solidus extrapolés à partir des mesures DSC et calculés par le logiciel JMatPro® de l'alliage FeCrVC en équilibre (Bleckmann et al., 2015)

	DSC-heating	DSC-cooling	Simulation
$T_l$ (°C)	1456	1453	1445
$T_s$ (°C)	1283	1284	1290

D'autres publications comme Gryc, Smetana, Zaludova, & Michalek, 2013 ont fait de même afin de mesurer l'évolution du liquidus et du solidus pour des aciers faiblement alliés et obtiennent des comportements non-linéaires des températures de transition en fonction de la vitesse de refroidissement.

### 1.5.1.3 Enthalpie de transformation (Chaleur latente)

L'enthalpie de transformation lors du passage liquide à solide est intrinsèque à la composition chimique du matériau et ne dépend donc pas de la vitesse de refroidissement. Cependant, cette grandeur est primordiale à la bonne compréhension du changement de phase. Celle-ci représente l'énergie nécessaire à la transformation d'une phase en une autre, en s'exprimant tel que :

$$L = H_{\text{liq}} - H_{\text{sol}} - \int_{T_{\text{sol}}}^{T_{\text{liq}}} C_p \cdot dT \quad (1.16)$$

Avec  $C_p$  qui est la capacité thermique à pression constante d'un matériau. Il est important de rappeler que la capacité thermique à volume constant est nulle pour un solide. Ainsi la dérivée de l'enthalpie par rapport à la température entre le liquidus et le solidus va se comporter différemment car l'intervalle de solidification change. Plus la vitesse de refroidissement est grande plus l'intervalle de solidification est grand et plus le pic de transformation s'étale sur

l'intervalle de solidification gardant une aire sous la courbe constante en fonction de la vitesse de refroidissement (enthalpie de transformation) (Bleckmann et al., 2015).

### **1.5.2 Justification et choix des paramètres étudiés**

La zone de transition solide-liquide est la zone où s'opère la microségrégation. Ainsi, une meilleure compréhension du comportement de cette zone par rapport à la cinétique de refroidissement permettrait d'améliorer les simulations de la macroségrégation dans les lingots de grande taille. Le choix s'est donc orienté vers deux paramètres qui varient en fonction de la vitesse de refroidissement et qui sont étroitement liés à cette zone critique :

- L'espace interdendritique secondaire (SDAS) : Cette grandeur intervient directement dans le modèle de Darcy qui simule la perméabilité de la zone de transition liquide-solide (partie 1.4.2.2),
- Les températures de transition, le liquidus et le solidus ( $T_{liq}$ ,  $T_{sol}$ ) : Ces deux paramètres délimitent l'espace de la zone de transition liquide-solide et vont donc jouer un rôle majeur dans l'avancement du front de solidification, ainsi que sur la largeur de la zone de transition liquide-solide. De plus, ces températures rentreront directement dans les modèles de microségrégation car elles délimitent l'intervalle de définition de la fraction solide ( $f_s$ ) (partie 1.4.2.1).

### **1.5.3 Appareils et techniques de mesure des paramètres**

Afin de mettre en évidence le comportement des éléments d'addition ségrégés dans les aciers faiblement alliés, plusieurs techniques de mesure sont utilisées pour caractériser la microstructure, la chimie, les propriétés thermophysiques ou les propriétés thermomécaniques. Beaucoup de techniques existent mais seulement quelques-unes seront vues, notamment en analyse thermique qui a été une étape très importante pour l'obtention des paramètres thermophysiques étudiés (Liquidus, Solidus et Enthalpie de transformation).

### 1.5.3.1 Attaque chimique

Le premier procédé vu est très utilisé pour identifier la microségrégation, il permet d'obtenir une image des différentes dendrites formées lors de la solidification, mettant en valeur la ségrégation positive ou négative (Figure 1.27). De la même manière que le « macroetching » se réalisant à l'échelle du lingot, cette méthode ne permet pas d'avoir une mesure quantitative de la ségrégation, mais plutôt d'établir une cartographie de la ségrégation au sein d'un alliage. Cette technique est la plus utilisée, car elle est assez rapide et demande des coûts assez faibles. Duan, Addad ou encore Pickering vont l'utiliser ou la comparer à de nouvelles méthodes complémentaires (Addad, 2007; Duan et al., 2016; E. J. Pickering & Bhadeshia, 2014).

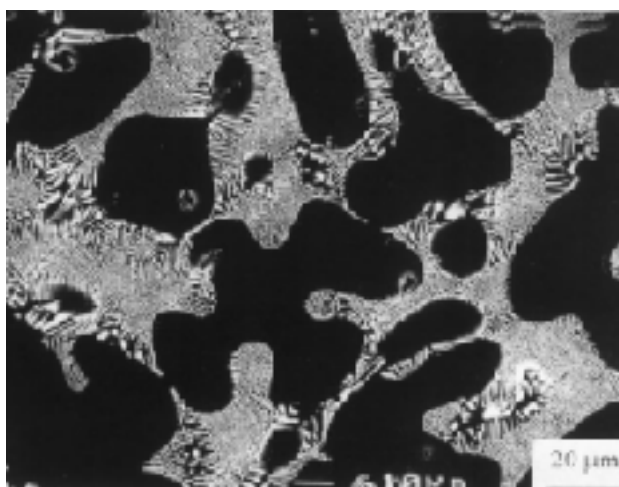


Figure 1.27 Attaque métallographique d'une coupe transversale lors d'un essai de solidification dirigée avec phase alpha de l'aluminium (Addad, 2007)

### 1.5.3.2 Microsonde de Castaing

Pour quantifier la ségrégation, il est possible d'établir des profils de concentration suivant un point, une ligne ou une aire de mesure (Figure 1.28). C'est avec l'apparition des microsondes de Castaing que l'étude quantitative relativement précise s'est démocratisée. Philibert et Flemings ont été les premiers à utiliser cette microsonde sur des profils dendritiques. Grâce à

ce type de données, il est possible de quantifier la microségrégation grâce au taux de microségrégation (Addad, 2007).

Le principe de ce type d'appareil est de bombarder un échantillon avec des électrons afin d'arracher des électrons de l'échantillon. Ce phénomène va laisser une empreinte énergétique pouvant être analysée par analyse dispersive en énergie (EDS) ou en longueur d'onde (WDS) (Addad, 2007).

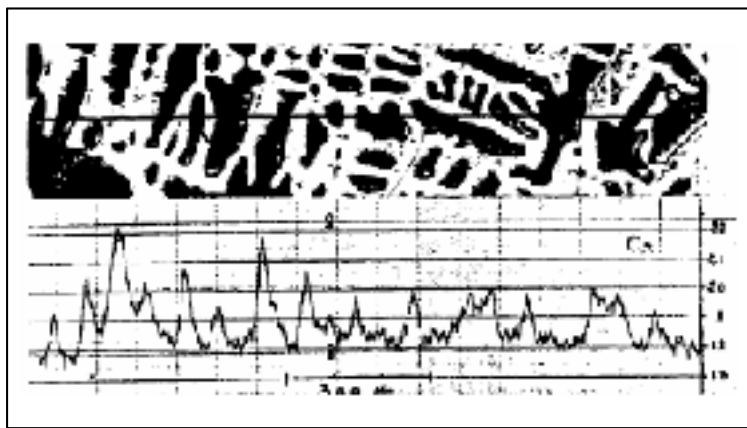


Figure 1.28 Profil de microségrégation dans une zone dendritique (Addad, 2007)

### 1.5.3.3 Analyse thermique DSC/DTA/TGA

L'analyse thermique permet de mesurer l'évolution d'un paramètre thermophysique en fonction de la température et du temps dans un environnement contrôlé. Son utilisation est intéressante dans le cas présent pour rendre compte du changement de phase liquide-solide qui existe lors du refroidissement d'un acier faiblement allié. Les températures de transition de phases, la température de fusion, le temps de solidification, la chaleur spécifique, l'enthalpie et la cinétique de la transformation peuvent être mesurés avec l'analyse thermique (Khan et al., 2014).

- TGA (« Thermogravimetric Analysis »)

Une ATG (ou TGA en anglais) (Analyse par ThermoGravimétrie) mesure les variations de masses relatives, et non absolues, sur un échantillon, lorsque celui-ci connaît des variations de température. Cependant, des phénomènes ne changeant pas la variation de masse comme la fusion, ne peuvent pas être identifiés par cet appareil. Ainsi, il est préférable d'y coupler un DSC ou un DTA. Par exemple, la thermogravimétrie ne permet pas d'observer la fusion du sel à 200°C contrairement à l'ATG (Figure 1.29) (Grenet & Legendre, 2010).

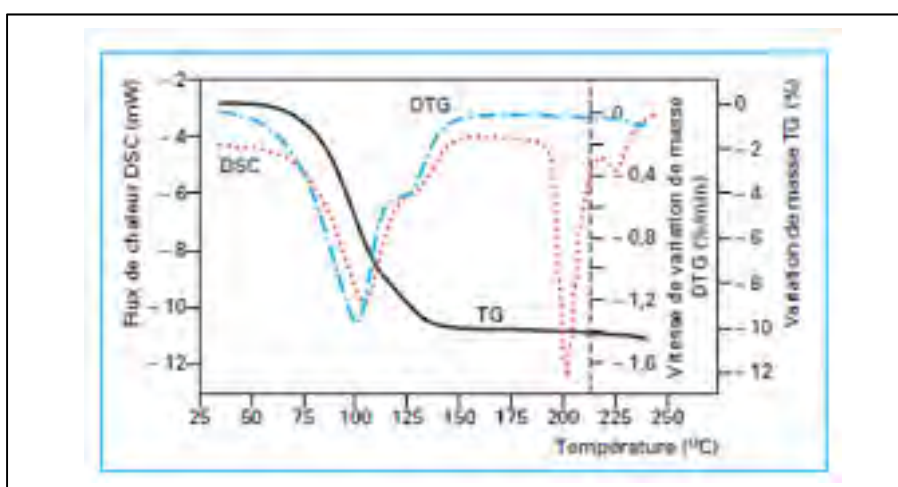


Figure 1.29 Déshydratation et fusion d'un sel dihydraté mises en évidence par DSC-ATG couplés (Grenet & Legendre, 2010)

- **DSC (« Differential Scanning Calorimetry ») à puissance compensée**

Un DSC est un appareil à l'origine connu pour avoir deux sources de chaleur indépendantes pour l'échantillon et la référence. On parle aujourd'hui de DSC à puissance compensée, car le but de cet appareil est de maintenir la température des enceintes de l'échantillon à température égale en générant des puissances différentes (Figure 1.30).

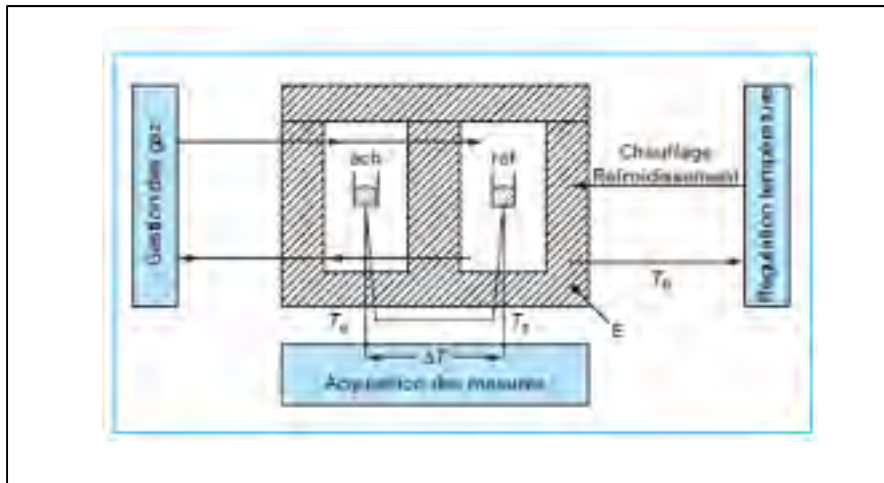


Figure 1.30 DSC power compensating (Grenet & Legendre, 2010)

- **DTA (« Differential Thermal Analysis ») / DSC (« Differential Scanning Calorimetry ») à flux de chaleur**

Enfin viennent les DTA et les DSC à flux de chaleur qui utilisent un seul élément de chauffage dans une enceinte fermée contenant l'échantillon et la référence. La différence entre les deux provient de la grandeur mesurée. Le DTA fournit des températures caractéristiques alors que le DSC permet également de déterminer des valeurs calorifiques telles que la chaleur latente de fusion ou de cristallisation. La mesure entre l'échantillon et l'étalon est une différence de tension avec un élément à haute conductivité thermique permettant de faire la liaison entre les deux. Ces appareils ne sont pas aussi précis qu'un DSC à puissance compensée, mais permettent de travailler à des températures plus élevées ( $>1000^{\circ}\text{C}$ ) en spécialité en métallurgie (Boettinger, Kattner, Moon, & Perepezko, 2006; Grenet & Legendre, 2010).

Tous ces instruments de mesures (DSC, TGA, DTA) sont complémentaires et leurs couplages permettent d'obtenir un panel d'informations beaucoup plus complet qu'avec une seule technologie, c'est le cas du « Simultaneous Thermal Analysis » (STA) qui est l'association d'un « Differential Scanning Calorimetry » (DSC) et d'un « Thermogravimetric Analysis » (TGA).



## **CHAPITRE 2**

### **Méthodes expérimentales et numériques**

#### **2.1 Objectifs**

L'objectif de cette partie est de présenter la démarche suivie afin de mettre en évidence l'influence de l'adaptation des paramètres étudiés en fonction de la vitesse de refroidissement sur les cartes prédictives de macroségrégation dans les lingots de grande taille. En premier lieu, il sera expliqué comment les paramètres à étudier ont été choisis et comment le logiciel de simulation numérique est construit afin de simuler la macroségrégation. Ensuite, un aperçu des lingots fournis par l'industriel sera fait et la méthodologie expérimentale réalisée à partir de différents échantillons sera explicitée. Dans un troisième temps, devant la complexité et la pluralité des mécanismes qui contribuent à la macroségrégation dans un lingot de grande taille, un modèle numérique de solidification unidirectionnelle est conçu. Enfin, une présentation du modèle numérique du lingot de 40 t sera présentée.

#### **2.2 Paramètres étudiés**

Avant d'illustrer le choix des paramètres étudiés, l'architecture du logiciel Thercast® doit être illustrée afin de mieux comprendre comment ces paramètres sont considérés par celui-ci (Transvalor, 2016). Plusieurs algorithmes peuvent être choisis, chacun utilisant des paramètres particuliers. Les principaux paramètres seront explicités mais les équations où ces derniers interviennent seront regroupées en annexe (Annexe I, II et III).

##### **2.2.1 Algorithmes de simulation de macroségrégation sur Thercast®**

Le logiciel Thercast® ressemble aux architectures qui ont été vues dans la revue de littérature mais celui-ci utilise ses hypothèses propres (Transvalor, 2016). Le vocabulaire du logiciel sera utilisé par la suite pour faciliter la compréhension. Plusieurs algorithmes incluant différentes hypothèses sont disponibles comme le modèle thermique, mécanique ou celui simulant la

macroségrégation. Dans le cas présent, c'est le dernier qui sera développé. La simulation de la macroségrégation peut être réalisée à partir de deux algorithmes (Les lois associées se retrouvent en annexe (Annexe I)) : thermohydraulique et thermomécanique avec les hypothèses suivantes (Transvalor, 2016) :

- **Phénomènes physiques de l'algorithme thermomécanique**
  - Partage des solutés entre le liquide et le solide ;
  - Contraction du solide ;
  - Convection thermo-solutale ;
  - Mouvement du liquide influencé par le mouvement du solide ;
  - Viscosité liquide artificiellement augmentée.
- **Phénomènes physiques de l'algorithme thermohydraulique**
  - Partage des solutés entre le liquide et le solide ;
  - Convection thermo-solutale ;
  - Perméabilité (Modèle de Darcy).

Les deux algorithmes sont complémentaires, ainsi certains paramètres ne seront utilisés que dans un des deux. C'est le cas de l'espace interdendritique secondaire qui intervient directement dans le modèle de Darcy modélisant la perméabilité (partie 1.4.2.2). De plus, après des échanges avec les développeurs du logiciel, la viscosité liquide sur l'algorithme thermomécanique a été volontairement augmentée afin de satisfaire des conditions de résolution numérique. Les différentes itérations entreprises par chaque algorithme sont regroupées en annexe (Annexe I).

## 2.2.2 Liste des paramètres considérés

Par la suite, la catégorisation des paramètres utilisée par le développeur (Transvalor) sera définie. Deux fichiers de propriétés sont nécessaires pour la simulation de la macroségrégation par Thercast®. Un fichier principal est utilisé afin de simuler la solidification du métal

regroupant les paramètres thermiques et thermomécaniques (Tableau 2.1), ainsi qu'un fichier secondaire permettant de simuler la macroségrégation opérante lors de la solidification (Tableau 2.2). Dans le cas de cette étude, l'intérêt se portait principalement sur l'étude expérimentale de l'évolution des paramètres considérés dans la simulation thermique et de la macroségrégation pour l'alliage utilisé par l'industriel (liquidus, solidus et SDAS). Cependant, le logiciel ayant besoin des paramètres thermomécanique pour les modèles élasto-visco-plastique et visco-plastique, les paramètres du 25CrMo4 de la base de données de Thercast® seront utilisés. La partie 3.3.1, permettra par la suite de justifier l'utilisation des paramètres 25CrMo4 pour la simulation en les comparants à ce que prédit JMatPro® pour l'alliage utilisé par l'industriel.

Tableau 2.1 Fichier principal Thercast® regroupant les paramètres thermiques et thermomécaniques

<b>Simulation Thermique</b>	
Capacité thermique massique ( $c_p$ )	$\text{J.kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
Conductivité thermique massique ( $\lambda$ )	$\text{W.m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
Masse volumique ( $\rho$ )	$\text{kg.m}^{-3}$
Fraction solide ( $f_s$ )	-
Émissivité ( $\varepsilon$ )	-
Chaleur latente de fusion (L)	$\text{J.kg}^{-1}$
<b>Simulation Thermomécanique</b>	
$K_{vp}$ (paramètre du modèle visco-plastique)	$\text{Pa.s}^{-1}$
$M_{vp}$ (paramètre du modèle visco-plastique)	-
$K_{evp}$ (paramètre du modèle élasto-visco-plastique)	$\text{Pa.s}^{-1}$
$H_{evp}$ (paramètre du modèle élasto-visco-plastique)	Pa
Module de Young (E)	Pa
Coefficient de Poisson ( $\nu$ )	-
$M_{evp}$	-
$N_{evp}$	-
Résistance mécanique ( $R_m$ )	Pa

Tableau 2.2 Fichier secondaire Thercast® regroupant les paramètres complémentaires de macroségrégation

<b>Simulation de la macroségrégation</b>	
Espace interdendritique secondaire ( $\lambda_2$ )	$\mu\text{m}$
Température de fusion ( $T_f$ )	$^{\circ}\text{C}$
Densité initiale ( $\rho_0$ )	$\text{kg.m}^{-3}$
Température de référence ( $T_c$ )	K
Coefficient de dilatation thermique ( $\alpha$ )	$\text{K}^{-1}$
Nombre de Fourier (éléments d'addition) ( $F_0$ )	-
Concentration initiale (éléments d'addition) ( $c_{0,i}$ )	-
Pente du liquidus (éléments d'addition) ( $m_{l,i}$ )	K
Coefficient de partage (éléments d'addition) ( $k_{p,i}$ )	-
Coefficient de dilatation thermique solutale (éléments d'addition) ( $\alpha_i$ )	-
Coefficient de diffusion (éléments d'addition) ( $D_i$ )	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$

Il faut noter également que les températures de transition, liquidus et solidus, sont contenues dans la loi de solidification avec la fraction solide ( $f_s$ ).

### 2.2.3 Problématique des simulations enchainées

Le logiciel Thercast® ne permet pas d'attribuer des paramètres différents dans différentes zones du lingot. Lorsqu'une géométrie quelconque de métal se solidifie, le champ de vitesse de refroidissement n'est pas uniforme, il faut donc trouver un moyen afin de segmenter cette géométrie et d'établir des paramètres uniformes dépendant de la vitesse moyenne dans ces segments. L'espace interdendritique secondaire ( $\lambda_2$ ) et les températures de transition liquide-solide ( $T_s$ ,  $T_l$ ) répondent à ce critère. Ces deux paramètres sont considérés dans la zone de transition liquide-solide, limitée dans l'espace. S'il est impossible de segmenter la géométrie dans l'espace, il est possible de la segmenter dans le temps (Figure 2.1). Grâce aux simulations enchainées, il est possible d'implanter dans le logiciel des propriétés différentes à chaque « maillon » de cette chaîne de simulations (Transvalor, 2016).

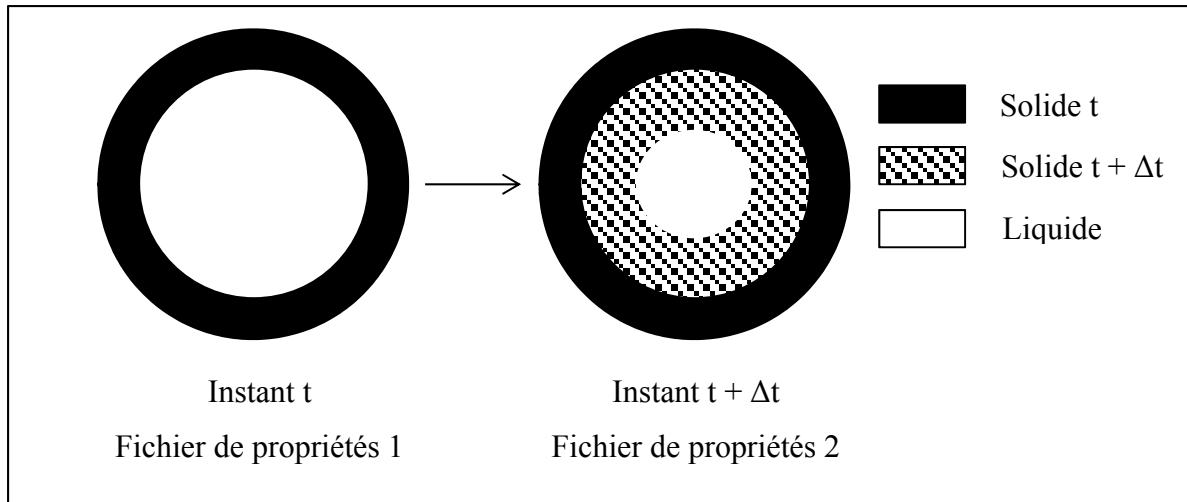


Figure 2.1 Simulation enchainée

### 2.3 Exploitation des lingots industriels

Deux lingots (ou parties de lingot) ont été utilisés pour la discussion et la validation des modèles de solidification. Le premier est un lingot de 40 t coupé dans son plan transverse et sur toute sa hauteur. Cependant, celui-ci ne fut pas coupé après coulée mais après forgeage, surfacage et traitement thermique. Ces étapes peuvent influencer la carte de macroségrégation, ainsi celles-ci seront prises en compte.

L'autre base expérimentale est la carte de macroségrégation de la masselotte d'un lingot de 40 t ainsi que 30 cm sous celle-ci dans le lingot fonctionnel. La masselotte est toujours coupée après la coulée de lingots de grande dimension, c'est pourquoi il est plus simple en terme de coût d'utiliser ce genre de donnée.

#### 2.3.1 Échantillonnage des deux ressources expérimentales

La masselotte du lingot de 40 t avec les 30 cm du haut du lingot est la ressource principale utilisée pour valider les résultats de la simulation (Figure 2.2). En effet, c'est à partir de celle-ci que tous les échantillons utilisés dans le cadre de ce travail seront choisis car ce lingot est directement récupéré après coulée. Ainsi une tranche d'épaisseur 2,5 cm d'une section

transversale réunissant la masselotte ainsi que 30 cm supplémentaires sur le haut du lingot a été coupée (Figure 2.2). Ensuite, une carte de ségrégation chimique a été réalisée avec un spectromètre optique ARL 4460 venant moyenner les valeurs de 3 mesures superficielles sur des parallélépipèdes de  $7 \times 5 \times 2 \text{ cm}^3$  environ (Loucif et al., 2016).

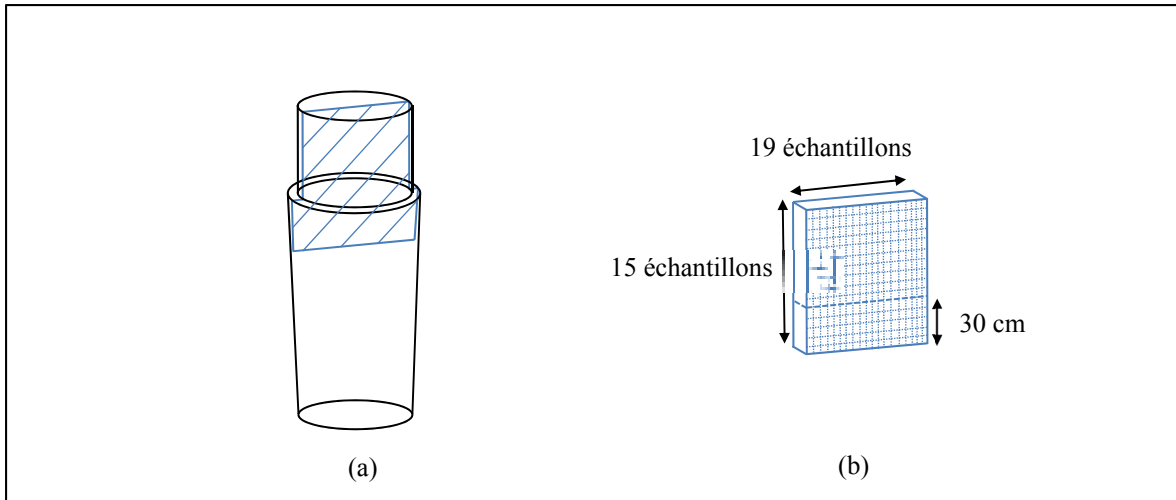


Figure 2.2 (a) Tranche transversale de la masselotte du lingot et (b) échantillonnage de la tranche

Le spectromètre optique permet d'identifier les entités chimiques présentes dans un échantillon de métal, comme le carbone (C), le manganèse (Mn), le phosphore (P), le soufre (S), le nickel (Ni), le chrome (Cr), le molybdène (Mo) et le cuivre (Cu). Cependant, la littérature s'appuie que sur des lois de comportement des SDAS et des températures de transition liquide-solide par rapport au carbone, car celui-ci a le rôle principal de l'alliage. En effet, celui-ci conditionne la croissance dendritique, la croissance des grains et les phases en présence lors de la solidification (Won & Thomas, 2001). La carte présentée illustre donc le taux de macroségrégation du carbone ( $r_c$ ) dans la masselotte et 30 cm du haut du lingot de 40 t (Figure 2.3).

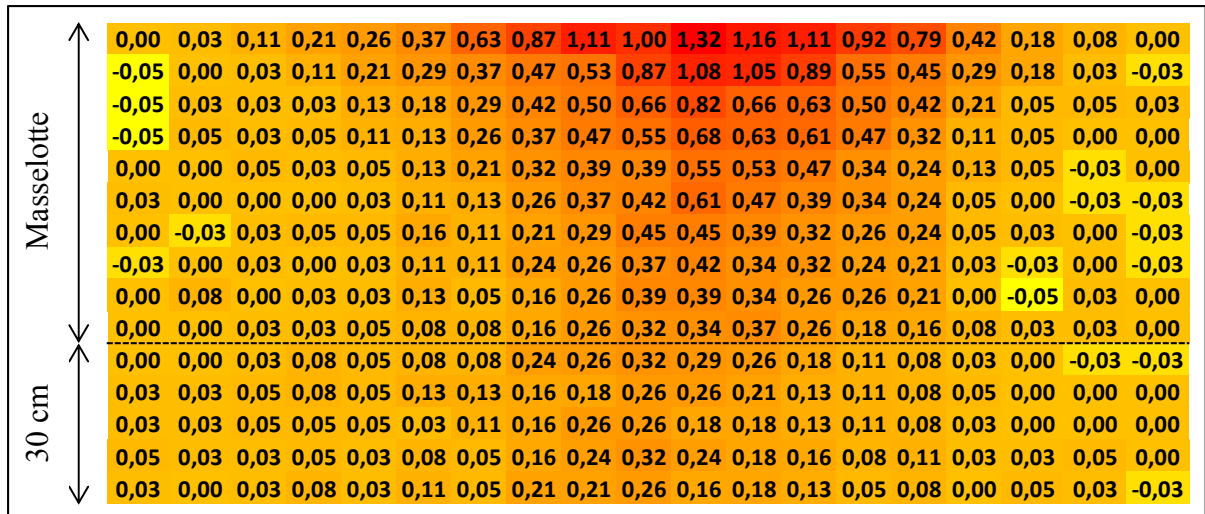


Figure 2.3 Taux de macroségrégation du carbone ( $r_c$ ) (m.% C) dans la masselotte et 30 cm du haut du lingot de 40 t mesurés à l'aide d'un spectromètre optique ARL 4460

Le deuxième lingot est un lingot forgé et traité thermique de forme parallélépipédique dont la section transversale a été découpée dans le plan médian (Figure 2.4). Celui-ci apparaît comme une ressource secondaire est permettra d'enrichir la discussion sur les résultats de simulation numérique de la macroségrégation dans un lingot 40 t (partie 3.6.2). En effet, comme celui-ci a connu des étapes supplémentaires (forgeage et traitement thermique), la carte de macroségrégation du carbone fournie en annexe (Annexe VI) peut avoir des variations sur l'intensité ou la répartition du carbone par rapport à une carte qui aurait été faite après la coulée. Cependant, la tendance reste la même devant l'ordre de grandeur des taux de macroségrégation mesurés.

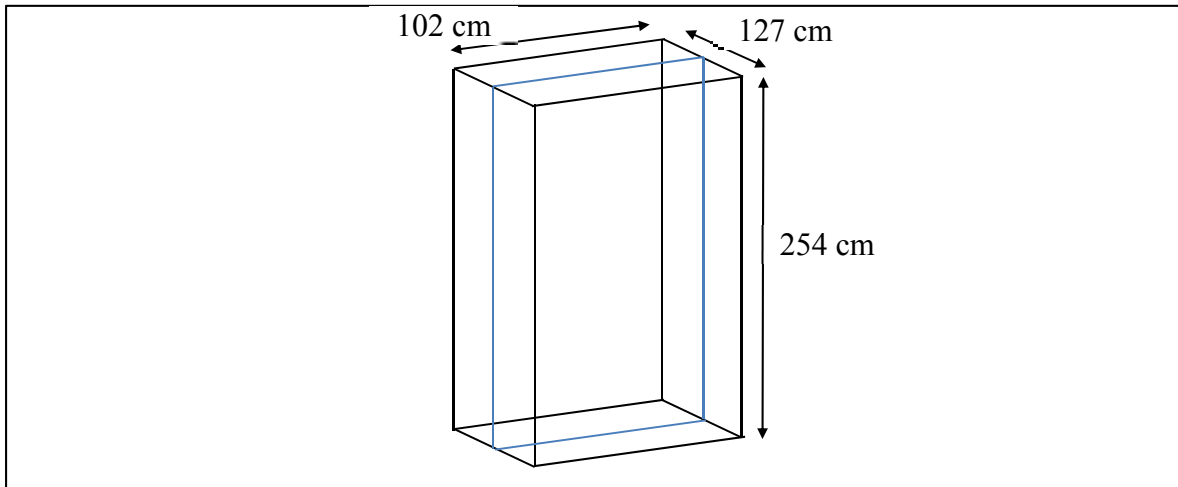


Figure 2.4 Coupe transversale du lingot 40 t forgé et traité thermiquement

### 2.3.2 Échantillons et paramètres étudiés

#### 2.3.2.1 Choix des échantillons pour l'étude de l'espace interdendritique secondaire

Le choix des échantillons a été réalisé dans le but de localiser les différentes morphologies des SDAS dans un lingot 40 t et ensuite, de développer une loi de comportement des SDAS par rapport à la vitesse de refroidissement lors de la solidification dans le même esprit que la littérature mais à des vitesses plus faibles (Weisgerber et al., 1999; Won & Thomas, 2001). Ainsi un échantillonnage a été fait sur toute la surface de la masselotte (Figure 2.5) et de la longueur 30 cm du haut du lingot pour la première partie et sur une ligne pour la deuxième tel ce qui a été réalisé dans la littérature par Rutsikii, Gamanyuk, Zyuban, Petrova, & Palatkina, 2017 (Figure 2.5).



1AA1T	1AA2T	1AA3T	1AA4T	1AA5T	1BA1T	1BA2T	1BA3T	1BA4T	1BA5T	1CA1T	1CA2T	1CA3T	1CA4T	1CA5T	1DA1T	1DA2T	1DA3T	1DA4T
1AB1T	1AB2T	1AB3T	1AB4T	1AB5T	1BB1T	1BB2T	1BB3T	1BB4T	1BB5T	1CB1T	1CB2T	1CB3T	1CB4T	1CB5T	1DB1T	1DB2T	1DB3T	1DB4T
1AC1T	1AC2T	1AC3T	1AC4T	1AC5T	1BC1T	1BC2T	1BC3T	1BC4T	1BC5T	1CC1T	1CC2T	1CC3T	1CC4T	1CC5T	1DC1T	1DC2T	1DC3T	1DC4T
1AD1T	1AD2T	1AD3T	1AD4T	1AD5T	1BD1T	1BD2T	1BD3T	1BD4T	1BD5T	1CD1T	1CD2T	1CD3T	1CD4T	1CD5T	1DD1T	1DD2T	1DD3T	1DD4T
1AE1T	1AE2T	1AE3T	1AE4T	1AE5T	1BE1T	1BE2T	1BE3T	1BE4T	1BE5T	1CE1T	1CE2T	1CE3T	1CE4T	1CE5T	Masselotte			
2AA1T	2AA2T	2AA3T	2AA4T	2AA5T	2BA1T	2BA2T	2BA3T	2BA4T	2BA5T	2CA1T	2CA2T	2CA3T	2CA4T	2CA5T				
2AB1T	2AB2T	2AB3T	2AB4T	2AB5T	2BB1T	2BB2T	2BB3T	2BB4T	2BB5T	2CB1T	2CB2T	2CB3T	2CB4T	2CB5T	2DC1T	2DC2T	2DC3T	2DC4T
2AC1T	2AC2T	2AC3T	2AC4T	2AC5T	2BC1T	2BC2T	2BC3T	2BC4T	2BC5T	2CC1T	2CC2T	2CC3T	2CC4T	2CC5T	2DD1T	2DD2T	2DD3T	2DD4T
2AD1T	2AD2T	2AD3T	2AD4T	2AD5T	2BD1T	2BD2T	2BD3T	2BD4T	2BD5T	2CD1T	2CD2T	2CD3T	2CD4T	2CD5T	2DE1T	2DE2T	2DE3T	2DE4T
2AE1T	2AE2T	2AE3T	2AE4T	2AE5T	2BE1T	2BE2T	2BE3T	2BE4T	2BE5T	2CE1T	2CE2T	2CE3T	2CE4T	2CE5T	10 cm			
3AA1T	3AA2T	3AA3T	3AA4T	3AA5T	3BA1T	3BA2T	3BA3T	3BA4T	3BA5T	3CA1T	3CA2T	3CA3T	3CA4T	3CA5T				
3AB1T	3AB2T	3AB3T	3AB4T	3AB5T	3BB1T	3BB2T	3BB3T	3BB4T	3BB5T	3CB1T	3CB2T	3CB3T	3CB4T	3CB5T	3DA1T	3DA2T	3DA3T	3DA4T
3AC1T	3AC2T	3AC3T	3AC4T	3AC5T	3BC1T	3BC2T	3BC3T	3BC4T	3BC5T	3CC1T	3CC2T	3CC3T	3CC4T	3CC5T	3DD1T	3DD2T	3DD3T	3DD4T
3AD1T	3AD2T	3AD3T	3AD4T	3AD5T	3BD1T	3BD2T	3BD3T	3BD4T	3BD5T	3CD1T	3CD2T	3CD3T	3CD4T	3CD5T	3DE1T	3DE2T	3DE3T	3DE4T
3AE1T	3AE2T	3AE3T	3AE4T	3AE5T	3BE1T	3BE2T	3BE3T	3BE4T	3BE5T	3CE1T	3CE2T	3CE3T	3CE4T	3CE5T				

Figure 2.5 Sélection des échantillons pour la morphologie (gris clair) et la loi de comportement des SDAS (gris foncé) sur la masselotte et les 30 cm du haut d'un lingot 40 t

Le choix des échantillons s'est fait par rapport à deux critères. Le premier est la teneur en carbone acquise par spectrométrie optique ARL 4460 (partie 2.3.1). Plus l'échantillon se situe proche du centre du lingot, plus la teneur en carbone sera grande ce qui correspond à la zone de macroségrégation positive (partie 2.3.1). Le deuxième critère fut la vitesse de refroidissement dans l'intervalle de solidification. Pour des raisons pratiques évidentes, il est difficile de placer des thermocouples sur le rayon du lingot. Cette dernière donnée a été déterminée grâce à la simulation numérique avec le logiciel Thercast® (partie 3.2).

Pour déterminer la morphologie des dendrites, les échantillons (gris clair sur Figure 2.5) ont été pris à distance régulière sur la largeur du lingot. Théoriquement, la symétrie est supposée parfaite entre les deux côtés de la masselotte mais une légère asymétrie existe sur le relevé spectrométrique de la masselotte (Figure 2.5) (partie 2.3.1). Celle-ci peut être due à des flux thermo-solutaux différents de chaque côté, conséquence d'un régime thermique différent lors de la solidification (Ed J. Pickering et al., 2015).

Enfin, une ligne d'échantillon (Figure 2.5) a été choisie pour l'étude de la microstructure sur un rayon du lingot et donc avec une discrétisation plus faible. Cette ligne a été choisie pour trois raisons. Premièrement, celle-ci est dans le lingot et non dans la masselotte. Puis, cette ligne permet de connaître l'effet d'un gradient progressif de la vitesse de solidification dans l'intervalle de solidification. Enfin, cette dernière apparaît comme la ligne avec la

concentration de carbone la plus stable (proche de la concentration nominale) sur toute la hauteur de la masselotte du lingot 40 t (Figure 2.3).

2.3.2.2 Choix des échantillons pour l’étude des températures de transition (Liquidus et Solidus)

Le choix des échantillons pour l’analyse thermique a été réalisé différemment. Celui-ci a été fait directement par rapport à la concentration locale en carbone des échantillons (Figure 2.3). En effet, l’analyse thermique a pour objectif de déterminer le comportement des températures de transition ( $T_{liq}$ ,  $T_{sol}$ ) pour plusieurs compositions regroupant une teneur proche de la nominale et des deux extrema (taux de macroségrégation maximum et minimum) des compositions qui existent dans la partie coupée du lingot (Figure 2.6). La teneur nominale de l’acier de Finkl Steel (Sorel) est donnée (Tableau 2.3).

Tableau 2.3 Composition nominale de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (m. %)

C	Mn	P	S	Si	Ni	Cr	Mo	Cu
0,38	0,88	0,013	0,002	0,39	0,16	1,83	0,47	0,14

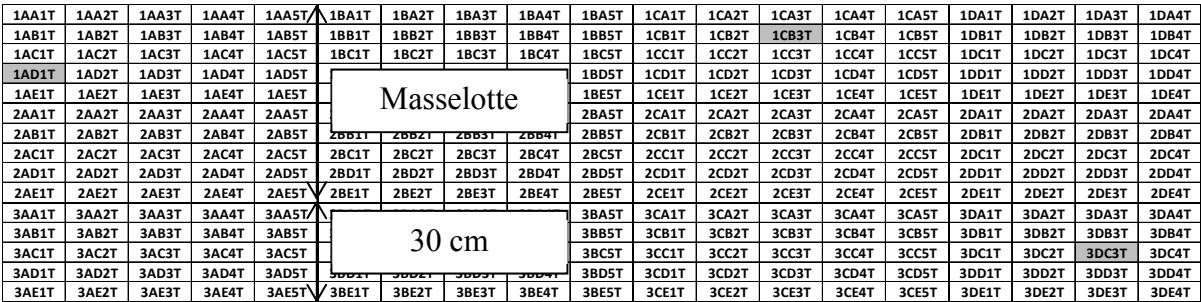


Figure 2.6 Sélection des échantillons (gris) sur la masselotte d'un lingot 40 t pour l'étude des températures de transition (Liquidus et Solidus)

La teneur des 9 éléments majoritaires est mesurée sur 12 points d’environ 1.5 cm de diamètre avec le spectromètre optique ARL 4460 sur les échantillons sélectionnés. L’échantillon de

macroségrégation négative n'a pas été retenu pour faire les analyses thermiques car sa concentration a été jugée trop proche de la concentration nominale, soit une concentration de carbone de 0.35 m.% C contre 0.38 m.% C (Tableau 2.4).

Tableau 2.4 Composition nominale (Composition 1, réf. 3DC3T)

	<b>C</b>	<b>Mn</b>	<b>P</b>	<b>S</b>	<b>Si</b>	<b>Ni</b>	<b>Cr</b>	<b>Mo</b>	<b>Cu</b>	<b>Fe</b>
<b>Composition nominale (réf. 3DC3T)</b>	0.38	0.92	0.011	0.001	0.38	0.17	1.90	0.46	0.14	Bal.
<b>Composition macroségrégée positivement (réf. 1CB3T)</b>	0.69	1.08	0.02	0.003	0.45	0.18	2.05	0.60	0.15	Bal.
<b>Composition macroségrégée négativement (réf. 1AD1T)</b>	0.35	0.92	0.01	0.001	0.37	0.17	1.84	0.45	0.13	Bal.

Ensuite, la dispersion des éléments d'addition sur les échantillons 3DC3T et 1CB3T est considérée. Il est à noter que la mesure du spectromètre a une résolution d'environ 1.5 cm de diamètre et que les échantillons pour l'analyse thermique (« échantillons DSC ») sont de 3 mm de diamètre ainsi l'hypothèse est faite que la composition surfacique est homogène sur un cercle de 1.5 cm (Tableau 2.5).

Tableau 2.5 Moyennes et dispersions statistiques de la concentration des éléments d'addition sur 12 mesures pour l'échantillon 3DC3T

Élément d'addition	Moyenne ( $\bar{c}$ )	Écart type ( $\sigma$ )	Écart type rapporté à la moyenne ( $\frac{\sigma}{\bar{c}}$ )
<b>C</b>	0.376	0.0049	1.31
<b>Mn</b>	0.917	0.0172	1.88
<b>P</b>	0.0107	0.00119	11.15
<b>S</b>	0.0011	0.00020	19.06
<b>Si</b>	0.372	0.0054	1.45
<b>Ni</b>	0.164	0.0024	1.45
<b>Cr</b>	1.90	0.021	1.10
<b>Mo</b>	0.463	0.0170	3.68
<b>Cu</b>	0.142	0.0032	2.22

Le carbone connaît une dispersion de 1.31% (Tableau 2.5) sachant que l'erreur de la machine est de 1% selon les informations du constructeur (Thermoscientific, 2010), la composition mesurée peut être considérée homogène sur la surface (Transvalor, 2016). Ainsi, lorsque les mesures de calorimétrie différentielle (DSC) seront réalisées, les essais de répétabilité pourront être effectués sur deux « échantillons DSC » voisins du même échantillon. La même chose a été réalisée pour 1CB3T. Celui-ci présente une hétérogénéité locale accrue avec des dispersions statistiques respectives de 9.25%, 6.26% et 7.05% pour le carbone, le manganèse et le silicium ce qui alors rentrera en compte dans la discussion des résultats.

### 2.3.3 Appareils et méthodes de mesures utilisés

#### 2.3.3.1 Espace interdendritique secondaire

Afin d'établir les micrographies, les échantillons ont été découpés, à l'aide d'une tronçonneuse circulaire, aux dimensions de  $2 \times 2 \times 1.5 \text{ cm}^3$ . Un travail bibliographique a été requis afin d'établir les attaques chimiques susceptibles d'apporter le meilleur rendu sur les dendrites.

Les premiers essais ont été réalisés avec l'acide chlorhydrique chauffé à 70°C (Weisgerber et al., 1999) mais les résultats obtenus étaient très hétérogènes. Ensuite avec des solutions d'acide nitrique (Ma & Li, 2016) en adaptant les concentrations (20 vol% $\text{HNO}_3$ -5 vol% $\text{H}_2\text{SO}_4$ - $\text{H}_2\text{O}$ , 20 vol% $\text{HNO}_3$  - $\text{H}_2\text{O}$  et 5 vol% $\text{HNO}_3$  - $\text{H}_2\text{O}$ ) en fonction du taux de carbone présent dans les échantillons caractérisés. Ces essais ne présentaient pas non plus de résultats permettant de mesurer les différents espaces interdendritiques secondaires en présence. Le choix le plus concluant a été la solution d'Oberhoffer (Hoó, Teleszky, Roósz, & Csepeli, 2006; Il'inskii, Kostyleva, & Gabel'chenko, 2008). Ensuite, un microscope optique AmScope est utilisé pour réaliser les prises d'images (Figure 2.7). Enfin, cinq lignes sont tracées pour chaque échantillon en utilisant le logiciel de traitement d'image ImageJ®, à différents endroits de la micrographie, le long des dendrites primaires afin de récupérer un maximum d'espaces interdendritiques secondaires (environ 5 ou 6 SDAS pour chaque ligne de mesure) grâce aux nuances de gris moyennés par la suite. Sur l'exemple de la Figure 2.8, 6 SDAS sont mesurées et une moyenne de ces dernières permet la taille des SDAS locales. Ainsi, comme cinq lignes de cinq à six SDAS sont réalisées pour chaque échantillon, une population de 25 à 30 SDAS est obtenue pour chaque échantillon.

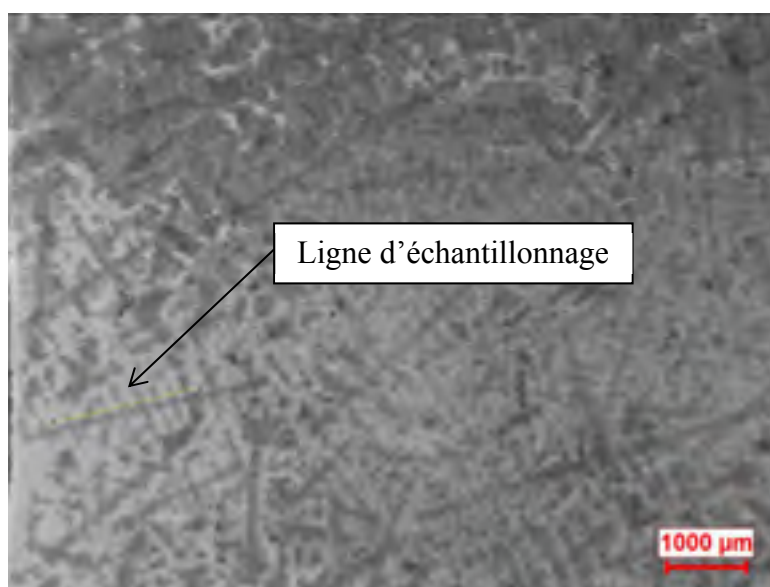


Figure 2.7 Tracé d'une ligne (en jaune) d'échantillonnage le long d'une dendrite primaire

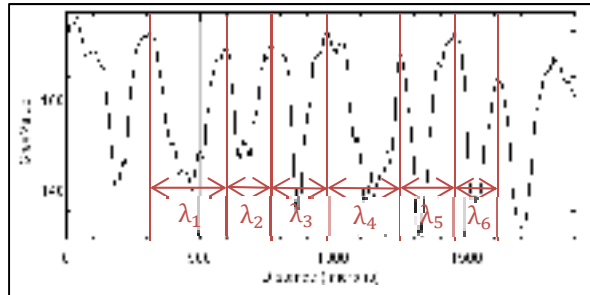


Figure 2.8 Échantillonnage des SDAS

### 2.3.3.2 Analyse thermique

L'analyse thermique a été l'un des plus grands défis de cette étude car cette dernière à haute température est très délicate avec des dégagements gazeux, des changements de composition chimique, des différences de masses entre les échantillons et l'incertitude des capteurs (ex : thermocouples) (Bleckmann et al., 2015). L'objectif de cette partie est en deux temps, le premier est basé sur la détermination d'une loi de comportement des températures de transition liquide-solide en fonction de la vitesse de refroidissement (Bleckmann et al., 2015). Puis un second afin de déterminer les paramètres thermophysiques à l'équilibre thermodynamique tel que la chaleur latente de fusion ( $L$ ) et la capacité calorifique massique ( $c_p$ ). Avant de se concentrer sur les moyens utilisés, un plan d'expérience est réalisé afin de juger du nombre d'essais requis permettant l'obtention de résultats valides et répétables. (Tableau 2.6) Les cycles thermiques sont choisis en fonction des caractéristiques de la machine Netsch® 404 F1 Pegasus (Netsch) et de la littérature (Bleckmann et al., 2015; Gryc, Smetana, Zaludova, & Michalek, 2013). Trois vitesses de refroidissement ont été choisies afin d'établir la tendance du liquidus et du solidus par rapport à la vitesse de celles-ci (Tableau 2.6). Il est vrai que l'ordre de grandeur des vitesses de refroidissement considéré dans les lingots de grande taille est plus faible que les vitesses choisies lors des essais (ordre de grandeur de  $1 \text{ K.min}^{-1}$  dans les lingots) (partie 3.2). Cependant des essais à de telles vitesses ne permettent pas d'obtenir des pics d'énergie lors de transformation de phases assez marqués permettant de réaliser des mesures (Bleckmann et al., 2015; Boettinger et al., 2006). Ainsi, l'objectif est de réaliser des mesures à vitesses de refroidissement plus élevées sur un intervalle assez large permettant de réaliser une régression et de prédire le comportement des températures de transition à plus faibles vitesses

(Bleckmann et al., 2015). Six essais sont donc nécessaires afin de faire les mesures pour la composition nominale (3DC3T) et la composition macroségrégée positivement (1CB3T) aux trois vitesses de refroidissements ( $10 \text{ K.min}^{-1}$ ,  $30 \text{ K.min}^{-1}$  et  $50 \text{ K.min}^{-1}$ ) (Tableau 2.6). Il est à noter que ces vitesses sont uniquement adoptées entre  $1550 \text{ }^{\circ}\text{C}$  et  $1200 \text{ }^{\circ}\text{C}$ , intervalle de température contenant le changement de phase liquide-solide. Cela afin d'optimiser le temps d'essai. (Figure 2.9)

Tableau 2.6 Liste des essais pour l'analyse thermique

Vitesses de refroidissement ( $\text{K.min}^{-1}$ )	Composition nominale (Nb. Essais)	Composition macroségrégée positivement (Nb. Essais)
10	1	1
30	1	1
50	3	1

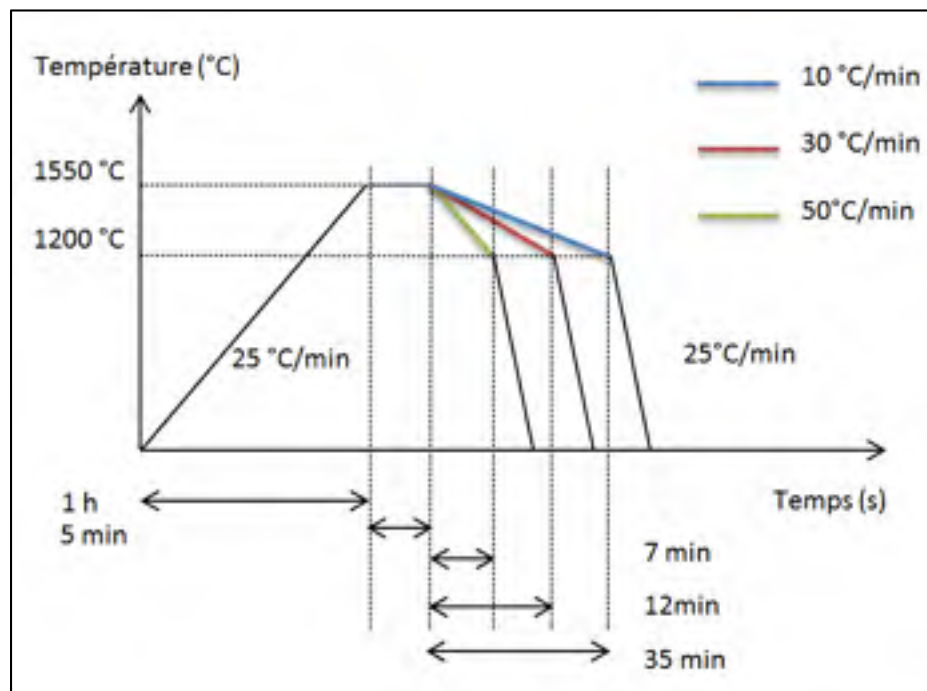


Figure 2.9 Cycles thermiques

La machine utilisée a été un DSC 404 F1 Pegasus de Netzsch® de l'Institut de Recherche d'Hydro-Québec (IREQ) permettant de réaliser uniquement des mesures calorifiques sans mesurer la variation de masse (Figure 2.10). L'atmosphère est inerte avec de l'argon (Ar) et un débit de  $50 \text{ ml.min}^{-1}$ . Deux creusets en alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) sont utilisés afin d'accueillir l'échantillon et d'avoir une référence pour la mesure (Figure 2.10).

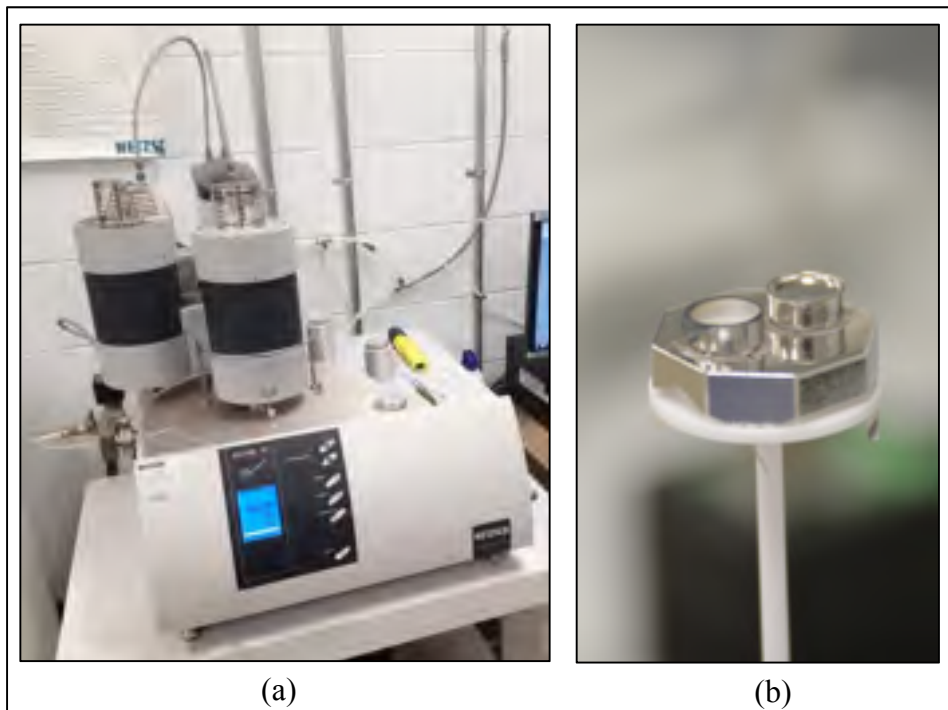


Figure 2.10 (a) DSC 404 F1 Pegasus de Netsch®, (b) creusets de la référence et de l'échantillon

## 2.4 Modèle numérique de solidification unidirectionnelle

Le modèle numérique de solidification unidirectionnelle a été conçu afin d'obtenir un front de solidification plan dans un cylindre. Celui-ci permet de diminuer les effets rencontrés dans un lingot de grande taille comme les flux du métal liquide dus au remplissage ou encore d'isoler uniquement les effets des flux thermo-solutaux ou la contraction solide locale (dans le cas de l'algorithme thermomécanique). Ces critères permettent d'adapter par la suite les paramètres étudiés suivant les vitesses de refroidissement rencontrées dans la zone de transition liquide-solide. Ce genre de modèle est utilisé dans la littérature afin de simplifier la solidification et de



pouvoir mieux la contrôler avec les conditions aux limites (Hebditch & Hunt, 1974; Liu, 2005; Wu et al., 2016).

#### 2.4.1 Géométrie et conditions aux limites

La géométrie choisie est telle que la taille des éléments de maille soit adéquate au phénomène étudié, la macroségrégation. Thercast® ne considérant pas de modèles plans, la conception d'un modèle 3D a été obligatoire. Une tranche de 6° est donc modélisée avec des conditions de symétrie afin de simuler la solidification du cylindre (Figure 2.11). La solidification est étudiée sur 10 cm (maillage le plus fin) à partir de la surface froide. Une longueur de 10 cm supplémentaire a été rajoutée afin d'accentuer l'inertie thermique de la source chaude et que la surface libre soit le plus longtemps à haute température (Figure 2.11).

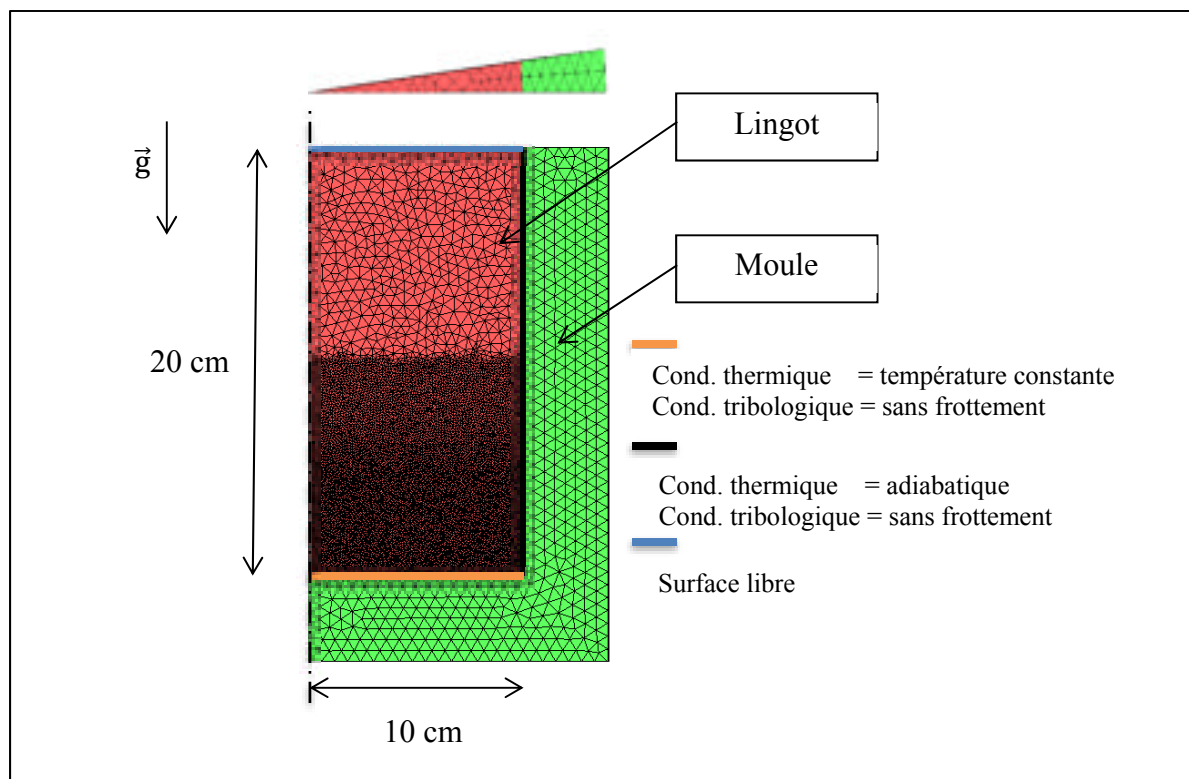


Figure 2.11 Géométrie et conditions aux limites du modèle à solidification unidirectionnelle

Les dimensions ont été choisies d'après les modèles de Wu et al., 2016, de Sawada et al., 2016 qui analysent l'apparition des canaux de ségrégation A ou Yu, Ding, Reye, Tewari, & Ojha, 2000 observant la croissance des dendrites lors d'une solidification colonnaire d'un alliage de Pb-Sn. De plus, on pourrait considérer la ressemblance de ce modèle à la cavité de Hebditch et Hunt qui est l'étude expérimentale de la macroségrégation sur deux alliages, Pn-Sn et Sn-Zn (Hebditch & Hunt, 1974). Gouttebroze reprend ce cas d'étude pour tester son programme de maillage anisotropique par rapport aux gradients de vitesse du fluide, le taux de macroségrégation et la fraction liquide (Gouttebroze et al., 2005). Dans le cas présent, il est difficile de reprendre la cavité de Hebditch-Hunt car il ne respecte pas l'objectif fixé qui est d'obtenir un front de solidification plan. Ce qui est respecté ici, grâce à l'orientation de la gravité dans le sens inverse au sens de solidification (Figure 2.11).

#### 2.4.2 Maillage

La thèse de Gouttebroze répond assez bien à la problématique du maillage pour simuler la macroségrégation en utilisant une géométrie similaire au cas présent car celui-ci utilise également Thercast® (Gouttebroze et al., 2005). Le chercheur utilise ce qu'il appelle un maillage adaptatif ou « une métrique » pour raffiner son maillage. Une maille est caractérisée par sa taille et son anisotropie. Les caractéristiques de mailles sont calculées à partir de 3 critères, qui, selon l'auteur sont déterminants dans la bonne représentation de la carte de macroségrégation finale : le gradient de vitesse,  $\overrightarrow{\text{grad}}(V)$ , le gradient de fraction liquide,  $\overrightarrow{\text{grad}}(f_l)$  et le gradient du taux de macroségrégation de l'élément d'addition,  $\overrightarrow{\text{grad}}(r_c)$ . Sur la Figure 2.12, la comparaison est faite entre un maillage fixe et un maillage adaptatif sur une géométrie proche de celle utilisée pour la solidification dirigée. Des tâches sont apparentes proches des bords du lingot sur la carte de macroségrégation avec un maillage fixe. Celles-ci sont des résultats aberrants dus à des tailles de maille beaucoup trop grandes devant la taille des gradients mis en jeu (Figure 2.12).

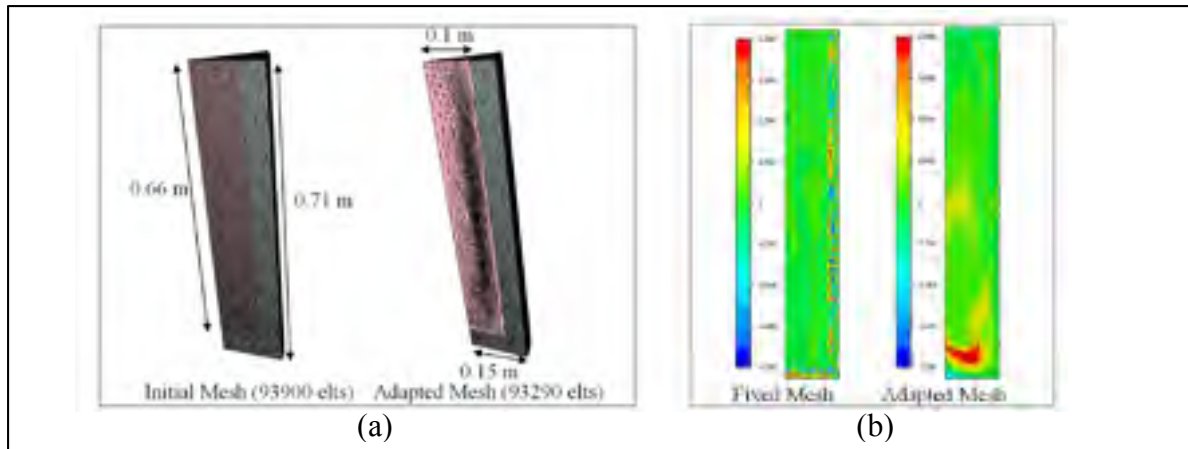


Figure 2.12 (a) Différence entre maillage fixe et adaptatif, (b) taux de macroségrégation pour maillage fixe et adaptatif

Dans le cas de Gouttebroze, la définition des critères et leur dimensionnement est très documentée (Gouttebroze, 2005). Comme ce dernier le souligne dans son article, un module de remaillage (MTC) remaille la géométrie de manière itérative. Après discussion avec les développeurs du logiciel, ce module de remaillage itératif est encore à l'étude et n'est pas disponible dans la version commerciale du logiciel. Le maillage adopté dans cette étude tiendra compte des dimensions de maille adoptées dans la littérature car les tailles des deux modèles sont similaires hormis les conditions aux limites (Gouttebroze et al., 2005; Wu et al., 2016). La suite de cette partie sera donc consacrée à la discussion du maillage et des résultats que l'on obtient sur le gradient de vitesse,  $\overrightarrow{\text{grad}}(V)$ , le gradient de fraction liquide,  $\overrightarrow{\text{grad}}(f_l)$ , et le gradient du taux de macroségrégation de carbone  $\overrightarrow{\text{grad}}(r_c)$ , avec une taille de maille de 1 mm et 3 mm après 100 s de solidification (Figure 2.13). Le maillage utilisé est défini comme uniforme mais le remailleur de Thercast® raffine automatiquement les mailles dans les zones à section faible, comme la bande de 2 mm de maille proche de la pointe de la tranche. (Figure 2.13) Il sera noté que l'optimisation du maillage a été réalisée pour l'algorithme thermomécanique.

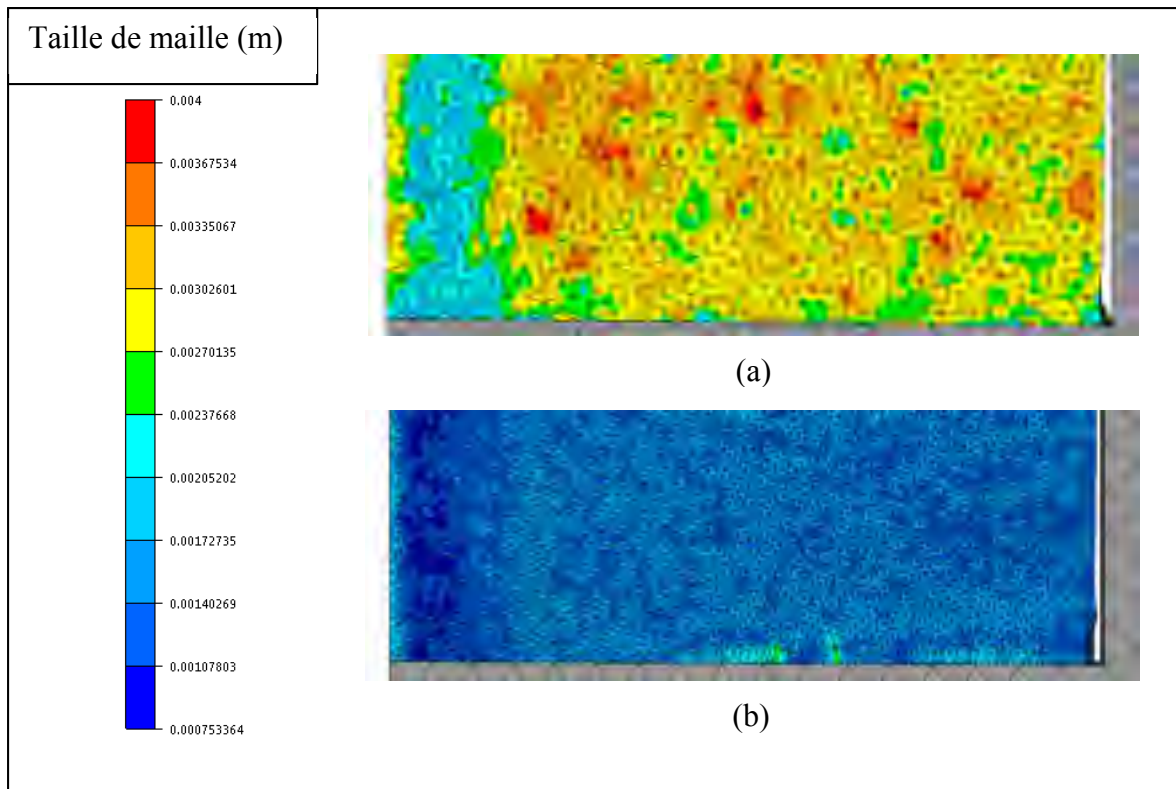


Figure 2.13 Maillage de la portion du cylindre de solidification dirigée avec une taille de maille moyenne de (a) 3 mm et (b) 1 mm.

#### 2.4.2.1 Gradient de fraction liquide

L'estimation du gradient de fraction liquide est similaire entre les deux tailles de maille avec une taille de zone de transition liquide de 9 mm dans les deux cas. Un maillage de 3 mm est donc suffisamment petit pour obtenir un résultat satisfaisant sur le gradient de fraction liquide. L'avantage d'avoir un maillage plus faible dans cette zone est de pouvoir discrétiser de manière plus précise la zone de transition liquide-solide. Cette zone est primordiale car une meilleure discrétisation de celle-ci permettra d'avoir une discrétisation du modèle de microségrégation plus fine (Figure 2.14) (annexe II).

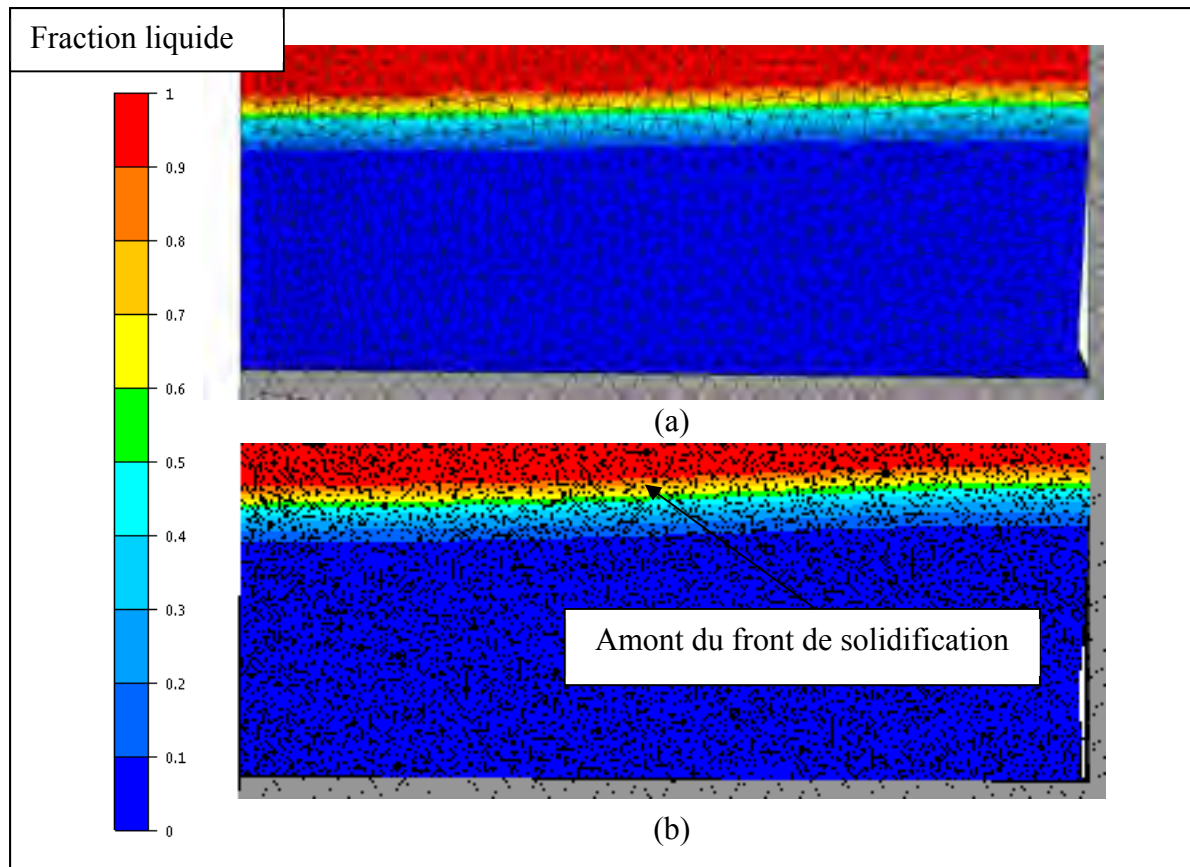


Figure 2.14 Fraction liquide avec un maillage de (a) 3 mm et (b) 1 mm.

#### 2.4.2.2 Gradient de vitesse

Deux zones sont intéressantes dans l'analyse des champs de vitesse. La première est en amont du front de solidification qui représente les vitesses du métal liquide dues à la convection thermo-solutale (Figure 2.15). La deuxième notable est due à la contraction solide qui apparaît dans le coin inférieur du lingot. Diminuer la taille de maille par 3 permet d'affiner le gradient de vitesse, on peut le voir par la plus grande pluralité des ordres de grandeur de vitesses dans le deuxième cas (Figure 2.15). Cependant, l'ordre de grandeur des vitesses à l'intérieur de la zone liquide est de  $5 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$  ce qui est très faible devant la taille du modèle. Selon Wu et al., 2016, à cet ordre de grandeur de vitesse, la microségrégation par diffusion est prépondérante sur la macroségrégation due aux flux du métal liquide (Wu et al., 2016).

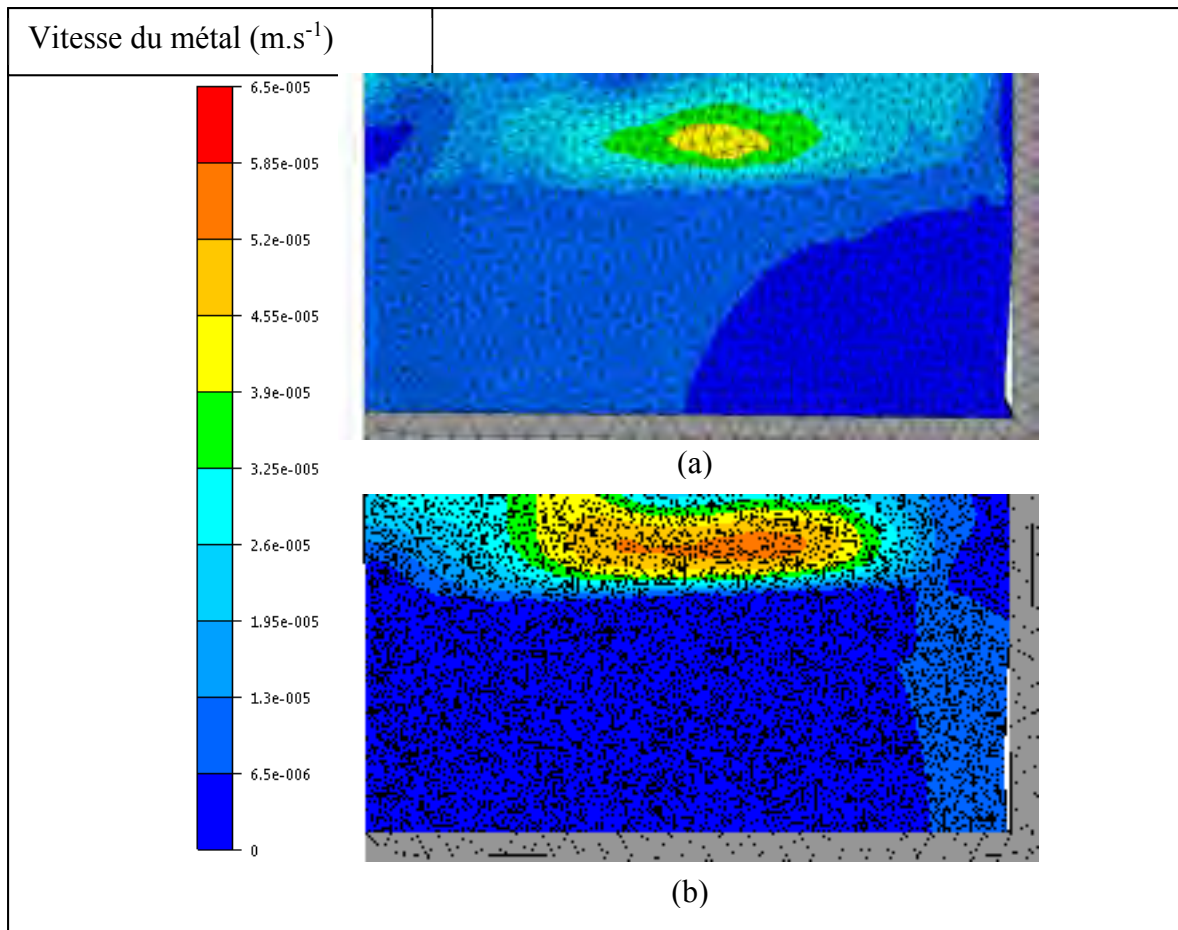


Figure 2.15 Champ de vitesse pour un maillage de 3 mm (a) et de 1 mm (b)

#### 2.4.2.3 Gradient du taux de macroségrégation du carbone

Comme il a été noté précédemment, le maillage a été établi d'après la littérature, il est possible de constater qu'avec un maillage de 3 mm il est quasiment impossible d'avoir une carte de macroségrégation fiable (Figure 2.16). Avec un maillage de 1 mm, le gradient du taux de macroségrégation du carbone est clairement plus net, il est possible d'observer l'effet de la contraction solide sur la macroségrégation positive (Figure 2.16). Des aberrations sont observables proche de la surface froide qui sont dus à des gradients beaucoup trop élevés notamment en température entre la surface froide ( $T_s=1000^\circ\text{C}$ ) et le métal liquide ( $T=1570^\circ\text{C}$ ). Ensuite, un essai a été fait en raffinant la taille de maille à 500  $\mu\text{m}$  sur une solidification de 1cm (Figure 2.17). La zone d'instabilité numérique devient plus fine mais existe toujours.



Cependant, le choix a été fait de garder une taille de maille à 1 mm car la réduire de moitié augmentait le temps de calcul par trois sur la simulation de 1 cm (3 jours contre 1 jour) (Figure 2.17). Finalement, le choix a été fait d'établir un maillage progressif sur les 10 cm de solidification étudiés, de 1mm proche de la surface froide jusqu'à 1.5 mm vers la fin de solidification par pas de 100  $\mu\text{m}$ . Cette configuration permet de réaliser la simulation numérique de la solidification des 10 cm en cinq jours avec l'algorithme thermomécanique.

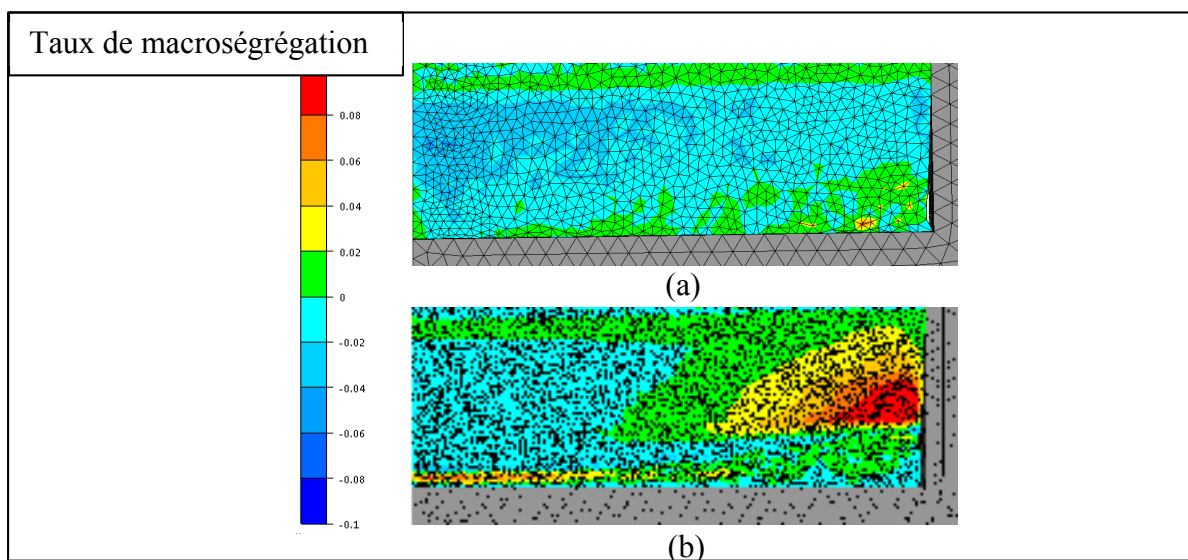


Figure 2.16 Taux de macroségrégation du carbone pour 3 mm (a) et 1 mm (b)

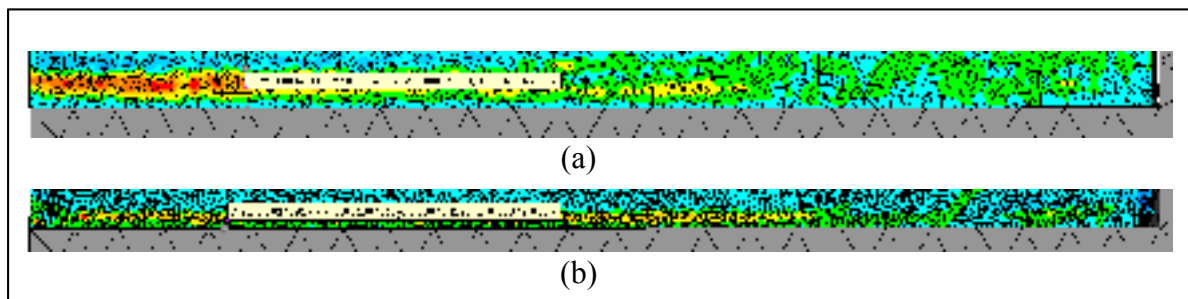


Figure 2.17 Maille de (a) 1 mm et (b) 500  $\mu\text{m}$  sur 1 cm de solidification

2.4.3      **Adaptation des paramètres par rapport à la vitesse de refroidissement**

L’explication de la méthodologie sera centrée sur l’adaptation des SDAS en fonction des vitesses de refroidissement grâce à la loi de Won pour l’alliage 25CrMo4 ayant pour liquidus, 1501°C et comme solidus, 1445°C (Équation 1.15). Afin de mesurer l’évolution de la vitesse de refroidissement de la zone de transition liquide-solide (qui sera appelée « zone de transition » par la suite), 13 capteurs sont placés le long de la trajectoire du front de solidification par pas de 1 mm. Le capteur 1 étant sur la surface de contact avec le moule ne sera pas pris en compte. De plus, le capteur 13 étant placé à 10 cm de la surface de refroidissement, celui-ci servira de critère d’arrêt. En effet, dès que le front de solidification atteint ce capteur, la simulation est considérée comme complète (Figure 2.18).

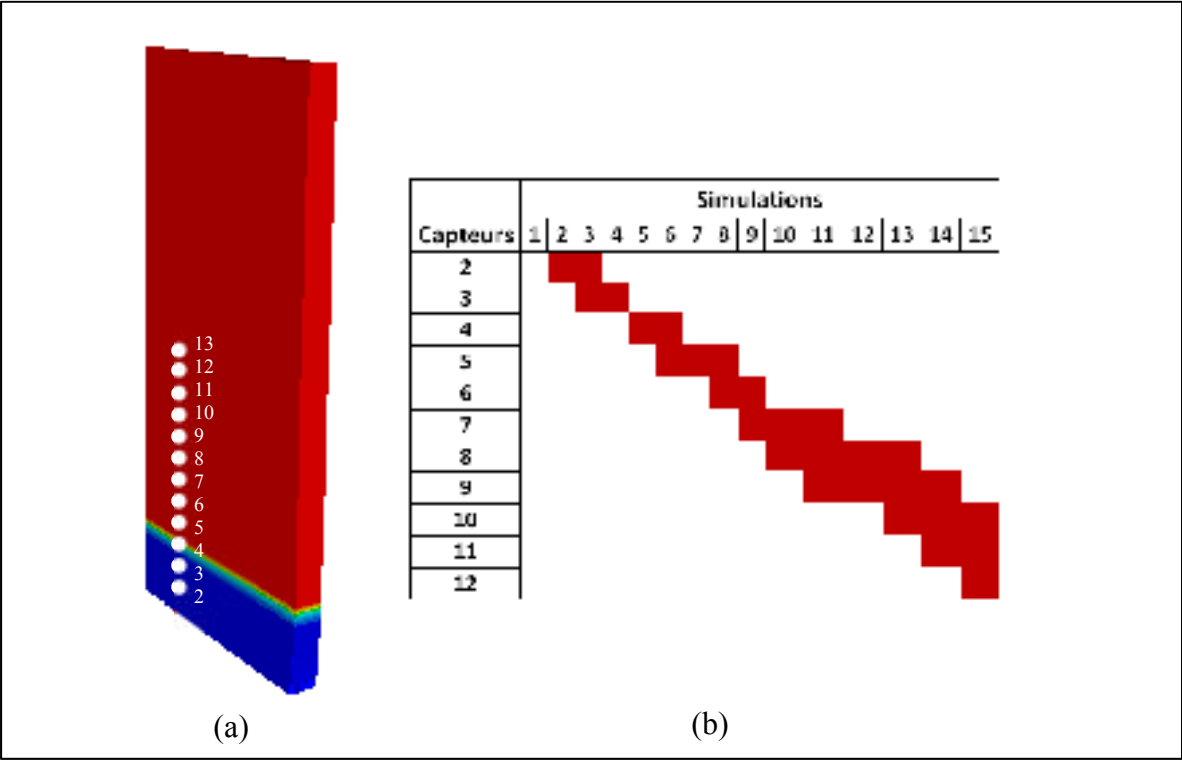


Figure 2.18 (a) Position des capteurs dans le tube et (b) simulations associées

Comme il a été expliqué dans la partie 2.2.3, la simulation complète est réalisée à partir de plusieurs simulations enchainées (Figure 2.18). Si l’exemple du capteur 5 est pris, la vitesse de



refroidissement de la zone de transition est mesurée sur les simulations 6 à 8. Ainsi, il y a 3 simulations qui regroupent le refroidissement du liquidus vers le solidus, on peut donc voir que trois régressions linéaires ont été faites (Figure 2.19). Chacune indique une vitesse de refroidissement différente, les SDAS associées sont alors calculées d'après la loi de Won.

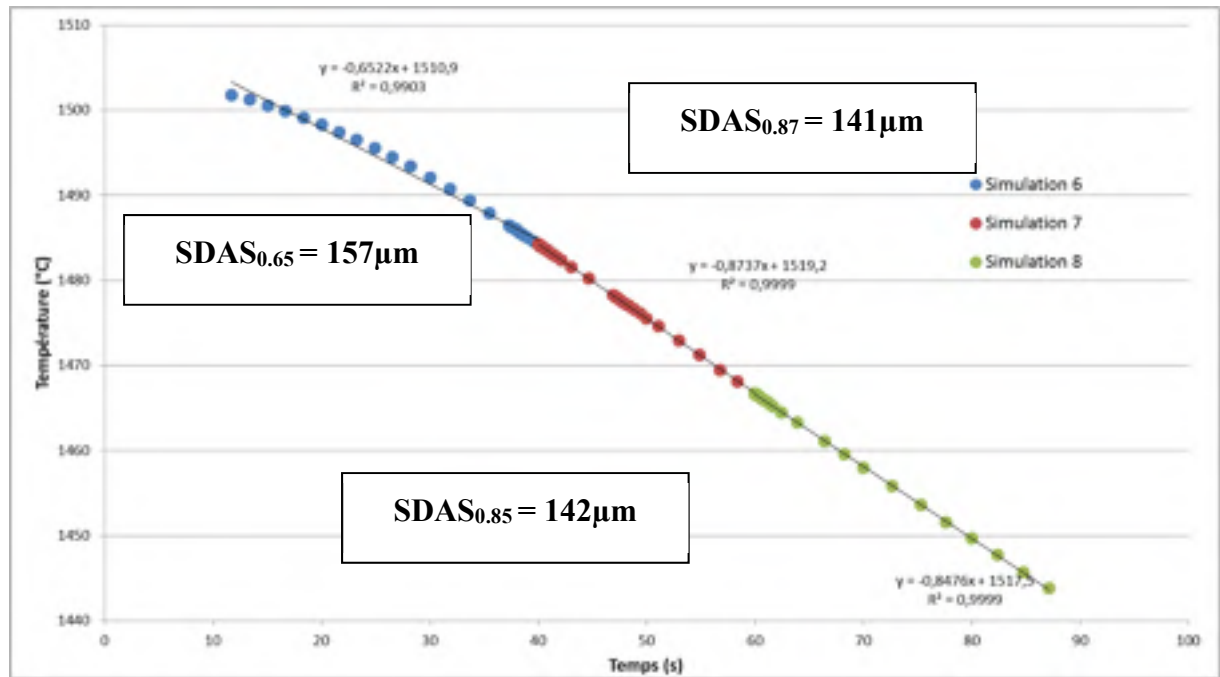


Figure 2.19 Température au capteur 5 en fonction du temps des itérations sur l'intervalle de solidification

La valeur du paramètre SDAS dans chaque simulation est un multiple de 50 choisie à partir de la valeur estimée par la loi Won la plus proche. Dans l'exemple du capteur 5, la valeur la plus proche est 150  $\mu m$  (Figure 2.19).

La stratégie adoptée afin de connaître la vitesse de refroidissement de la zone de transition est eulérienne : en un point donné de la géométrie, l'évolution de la fraction liquide est mesurée. Ainsi, il est possible de tracer l'évolution de la température en fonction de la vitesse de refroidissement sur l'intervalle de solidification (entre le liquidus et le solidus). Le choix a été fait de ne pas utiliser directement les vitesses de refroidissement mesurées par Thercast®. Il faut rappeler que le logiciel fait des simulations enchainées les unes après les autres avec chacune un SDAS différent et déterminé par rapport à la vitesse de refroidissement. A chaque

nouvelle simulation le compteur de temps se relance à zéro avec un pas de temps sur l'itération qui est très petit et proche du pas de temps initial (0.001s). Thercast® donne la vitesse refroidissement en prenant le différentiel de température sur un pas de temps donné mais si ce dernier est très petit, le logiciel calcul une vitesse de refroidissement aberrante à l'origine (environ 3.8 °C/s). Ce qui est constatable sur la Figure 2.19 représentant l'estimation de la vitesse de refroidissement pour le capteur 5 (simulation 7). Ainsi, ces données faussent des déterminations par moyenne. La moyenne des vitesses de refroidissement est évaluée à 0.73°C/s alors que celle déterminée par régression est 0.87°C/s. Ainsi le choix a été fait de faire une régression linéaire en s'assurant que le coefficient de détermination ( $R^2$ ) soit bien strictement supérieur à 0.98.

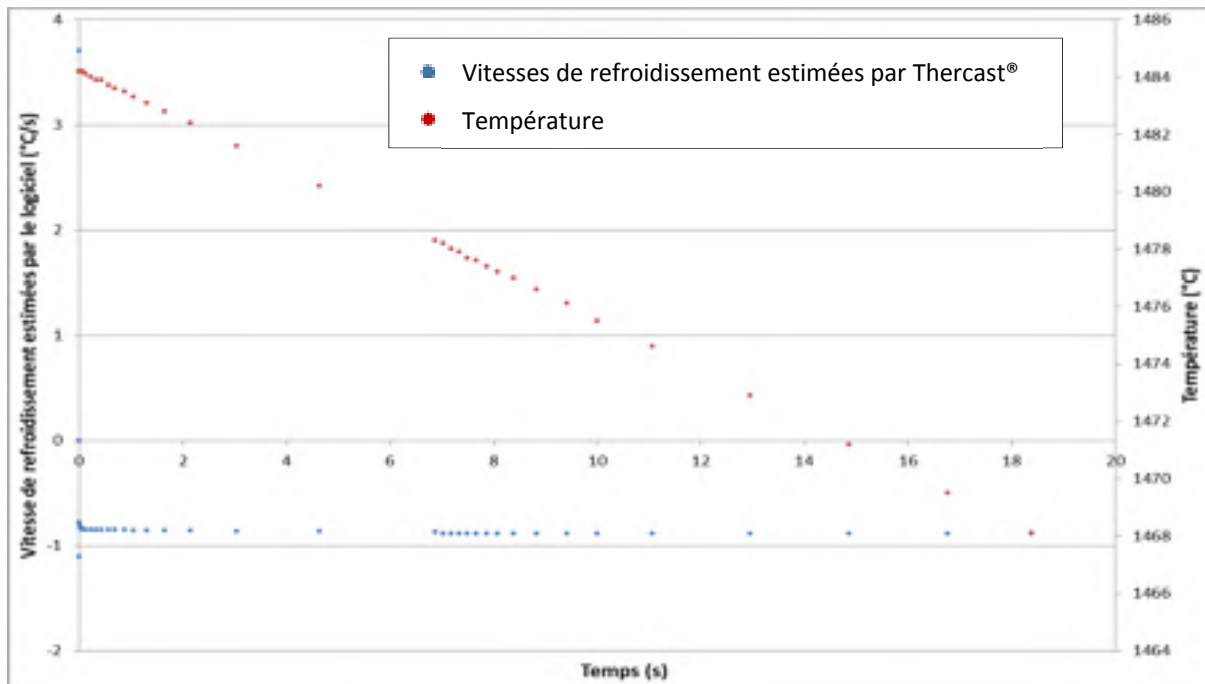


Figure 2.20 Tracé des vitesses de refroidissement (courbe bleue) et des températures (courbe rouge) pour le capteur 5 et simulation 7

Enfin, un autre problème peut survenir si une analyse lagrangienne est considérée. Si on considère l'avancement de la zone de transition plutôt que les capteurs, celle-ci englobe, plusieurs capteurs car plus cette dernière avance, plus elle s'élargie. C'est le cas notamment des capteurs 7, 8 et 9, comme on peut le voir sur la Figure 2.21.

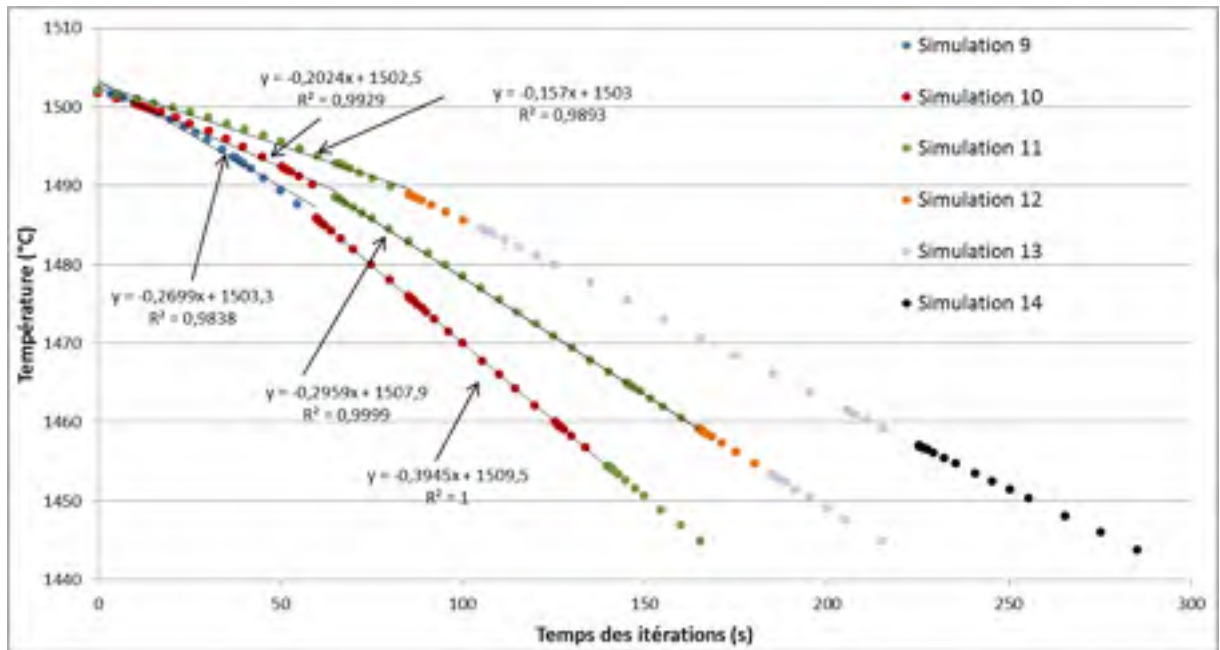


Figure 2.21 Température en fonction du temps des itérations pour les capteurs 7, 8 et 9 dans l'intervalle de solidification.

Par exemple, la simulation 11 englobe le début de la solidification du capteur 9, la zone transitoire du capteur 8 et la fin de solidification du capteur 7. Le critère utilisé dans ce cas est de choisir la vitesse de refroidissement associée au capteur qui est le plus proche de la zone liquide qui sera donc le capteur 11 (Figure 2.11). Ainsi,  $SDAS_{0.16} = 260 \mu m$  et une valeur de  $250 \mu m$  a été choisie pour la simulation, de façon à maximiser la perméabilité de la zone (loi de Darcy) donc à se mettre dans le cas le plus critique.

## 2.5 Modèle numérique du lingot de 40 t

Le modèle du lingot de 40 t a été réalisé par le groupe CM2P (Chunping et al., 2017). Dans cette partie il sera montré quelles hypothèses il a été fait au niveau des différentes composantes, que cela soit au niveau des propriétés matériaux ou les types d'échanges qui existent entre les différents éléments du modèle. De la même manière que pour le modèle de solidification dirigée, une discussion sur le maillage a été apportée en fonction des différents critères définis par Gouttebroze (Gouttebroze, 2005).

### 2.5.1 Géométrie et conditions aux limites

La géométrie est une tranche de 7.5° d'un montage d'une lingotière contenant un lingot de 40 t. Celle-ci réunit 8 éléments de matériaux différents qui sont le lingot, le moule du lingot, le moule de la masselotte, 3 réfractaires, la poudre exothermique et le support (Figure 2.22). Les fichiers matériaux, autres que celui du lingot, réunissent des informations principalement thermiques comme la capacité calorifique massique ( $c_p$ ), la conductivité thermique ( $k$ ) ou l'émissivité ( $\epsilon$ ). En effet, l'ensemble du moule, des réfractaires et de la poudre exothermique sont considérés comme indéformables. Ces fichiers de propriétés proviennent de la base de données de Thercast® est répondent à des propriétés matériaux obtenues par JMatPro®. Pour l'exemple des moules et du support, les propriétés caractérise le comportement thermique d'une fonte usuelle de coulée.

Ensuite, les échanges entre les pièces sont de deux types : thermiques et tribologiques. De la même manière ces fichiers réunissent des propriétés comme le coefficient de convection thermique ( $h$ ), l'émissivité ( $\epsilon$ ) ou la conductivité thermique ( $k$ ). L'enthalpie de réaction de la poudre exothermique est la seule donnée provenant du constructeur. La loi utilisée pour simuler le frottement est la loi de Coulomb.

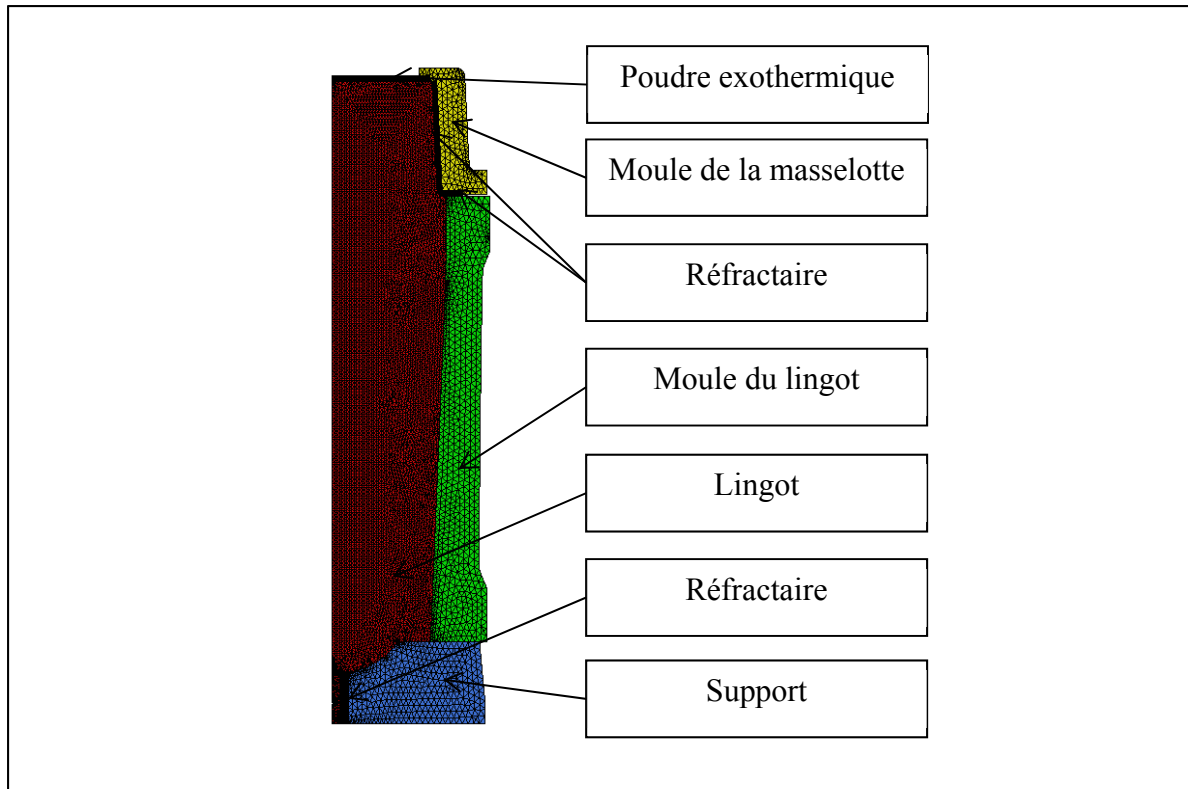


Figure 2.22 Géométrie et conditions aux limites du lingot de 40 t

## 2.5.2 Maillage

La géométrie du lingot de 40 t est beaucoup plus grande que le modèle de solidification directionnelle et comme le temps de calcul dépend du nombre d'éléments, ces derniers ont une taille plus grande (environ 2 cm). La discussion sur le maillage du lingot de 40 t a été réalisée de la même manière que celle en partie 2.4.2 (partie 2.4.2) sur le maillage du modèle de solidification unidirectionnelle.

### 2.5.2.1 Gradient de fraction liquide

Le gradient de fraction liquide semble correct car les champs de fraction liquide ne présentent pas de discontinuité avec une zone de transition liquide-solide s'agrandissant au fur et à mesure de l'avancement de la solidification. La fraction liquide ne présente pas de besoins importants sur le raffinement du maillage (Figure 2.23).

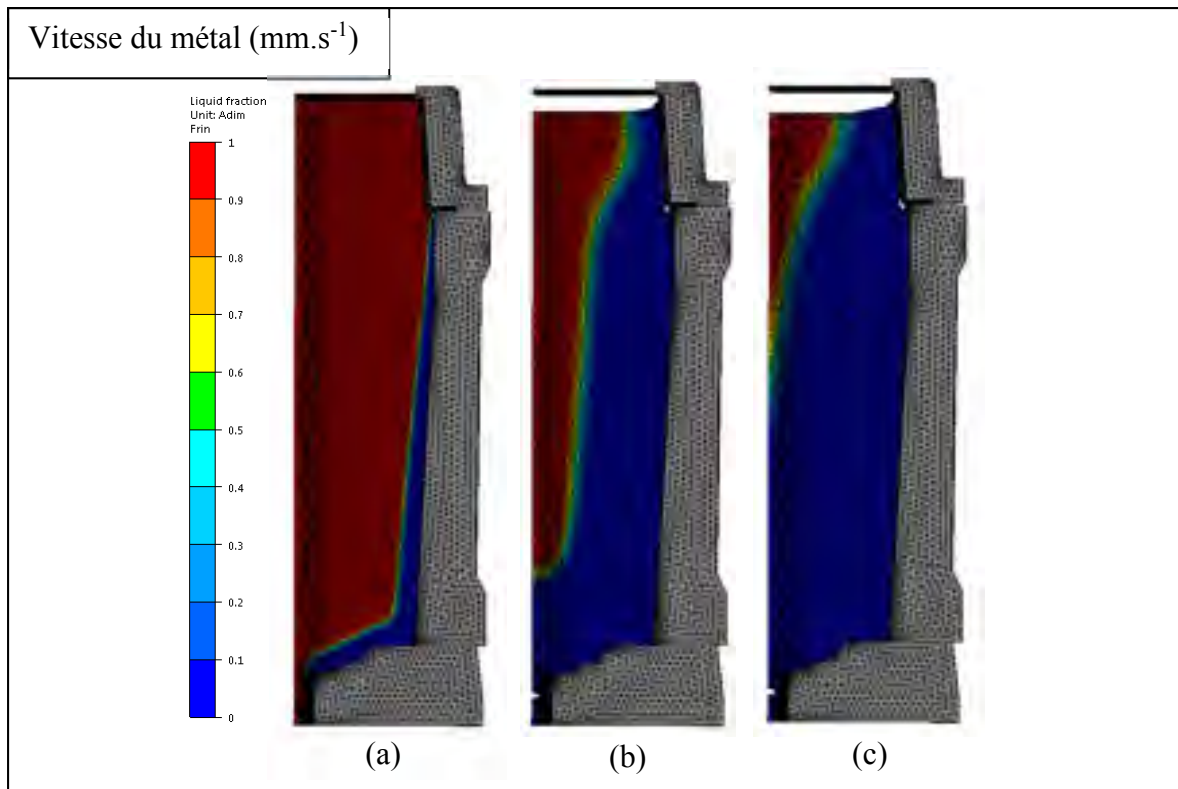


Figure 2.23 Champ de fraction liquide à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min et (c) 7 h 59 min

### 2.5.2.2 Gradient de vitesse

Il est assez complexe d'afficher les vitesses sur une échelle proportionnelle car elles varient beaucoup au sein du lingot, c'est pour cela que le champ de vitesses à 4 h 39 min a été tracé avec deux échelles différentes (Figure 2.24). De fortes vitesses sont remarquables sur l'axe de symétrie du lingot, celles-ci sont dues au remplissage par le bas du moule. En effet, cette caractéristique est remarquable en cours de remplissage à 23 min. Le front du métal se remplissant dans le moule est d'ailleurs observable (Figure 2.24). Dans l'ensemble, les gradients sont assez nets mais à haut gradient de vitesse (proche du front de solidification) il serait intéressant de raffiner le maillage comme il est possible de le constater à travers des tâches clairsemées sur le front de solidification à 4 h 39 min (Figure 2.24).

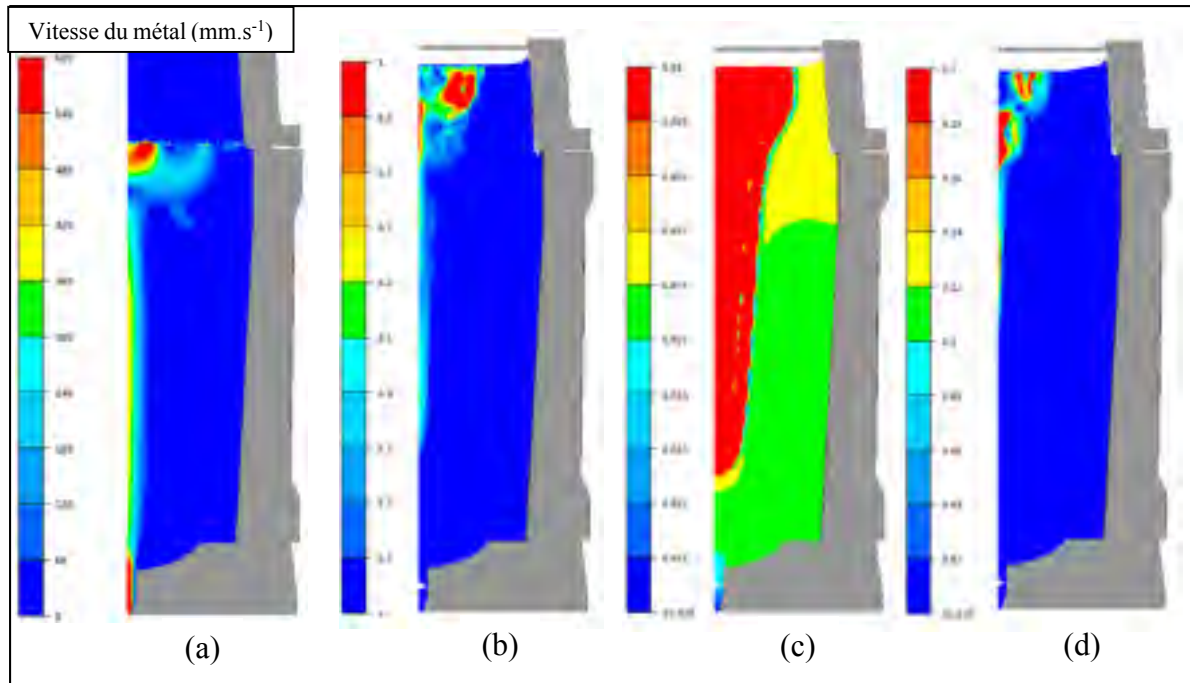


Figure 2.24 Champ de vitesse à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min (grandes vitesses), (c) 4 h 39 min (petites vitesses) et (d) 7 h 59 min

### 2.5.2.3 Gradient du taux de macroségrégation du carbone

Le champ de macroségrégation est typiquement un indicateur qui montre que le maillage choisi n'est pas assez fin pour simuler la macroségrégation (Figure 2.25). Comme le montre Gouttebroze dans sa thèse, les amas hétérogènes proches de la surface sont dus à l'instabilité numérique provenant d'une discrétisation de l'espace trop grossière. Dans le cas présent, la taille de maille choisie est de 2 mm et 1.5 mm proche de l'orifice de remplissage. Gouttebroze simule la solidification d'un lingot de 1 m 70 de hauteur et 0.6 m de diamètre sur un angle de 15°. Cependant, le cas étudié présentement est un lingot de 3 m 30 de hauteur et de 1 m 50 de diamètre sur un angle de 7.5° (Figure 2.25). Le volume étudié est donc 6 fois plus grand que le volume utilisé par Gouttebroze (Gouttebroze et al., 2005). Ce dernier étudie deux cas de maillage avec 100 000 éléments et 300 000 éléments contre 150 000 dans le cas étudié présentement, sachant qu'il utilise son algorithme de maillage adaptatif raffinant son maillage en fonction des 3 gradients vus dans la partie 2.4.2. Sa taille d'élément est de 200  $\mu\text{m}$  proches des zones critiques (Gouttebroze et al., 2005). La limitation de la puissance des machines (cinq

jours de calcul) et la non-possibilité de réaliser un maillage adaptatif au cours du temps, contraint à garder ce maillage. Cependant, il est possible que les tendances observées soient proches de l'expérimental, ce qui sera discuté dans la partie des résultats par la suite (partie 3.6.2).

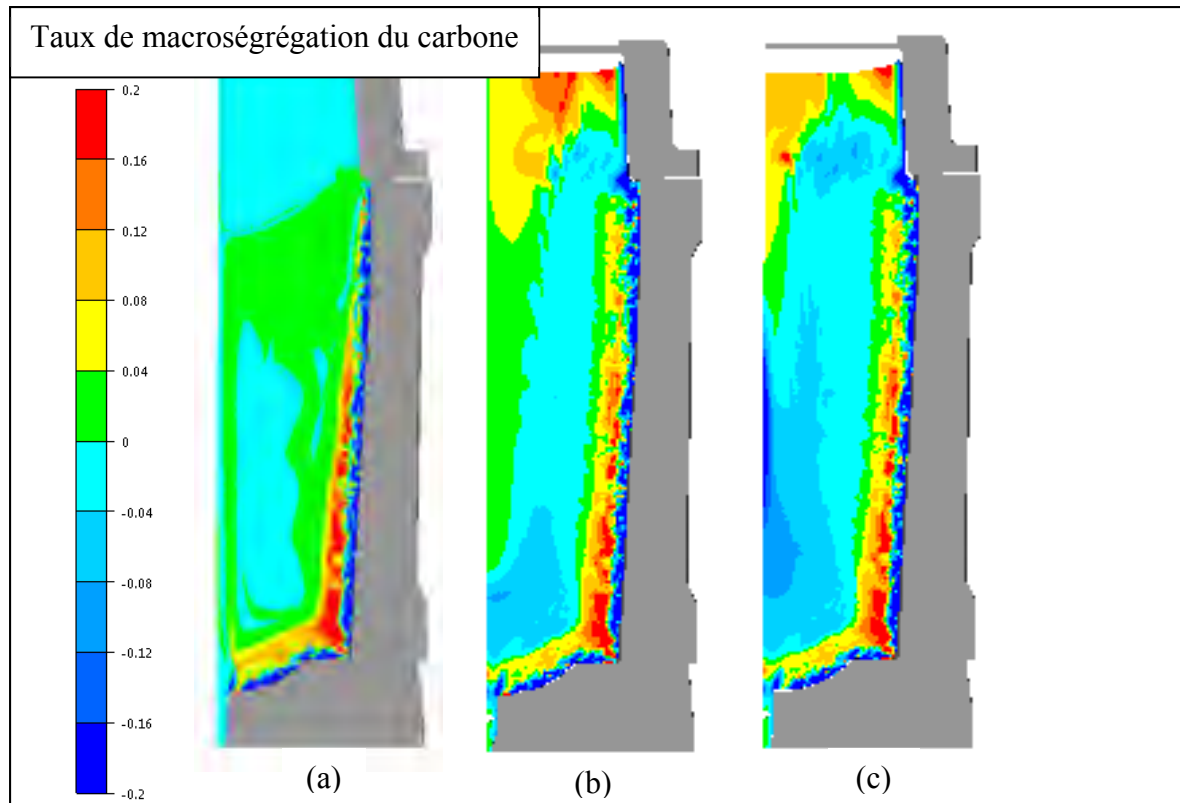


Figure 2.25 Champ du taux de macroségrégation du carbone à (a) 23 min, (b) 4 h 39 min et (c) 7 h 59 min

### 2.5.3 Adaptation des paramètres par rapport à la vitesse de refroidissement

Une démarche similaire à celle utilisée pour le modèle de solidification unidirectionnelle a été mise en place pour étudier l'influence d'adapter les paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement locale. Ainsi une discrétisation suivant la direction normale au front de solidification est réalisée afin de connaître les vitesses de refroidissement moyennes de chaque portion du lingot (Figure 2.26).



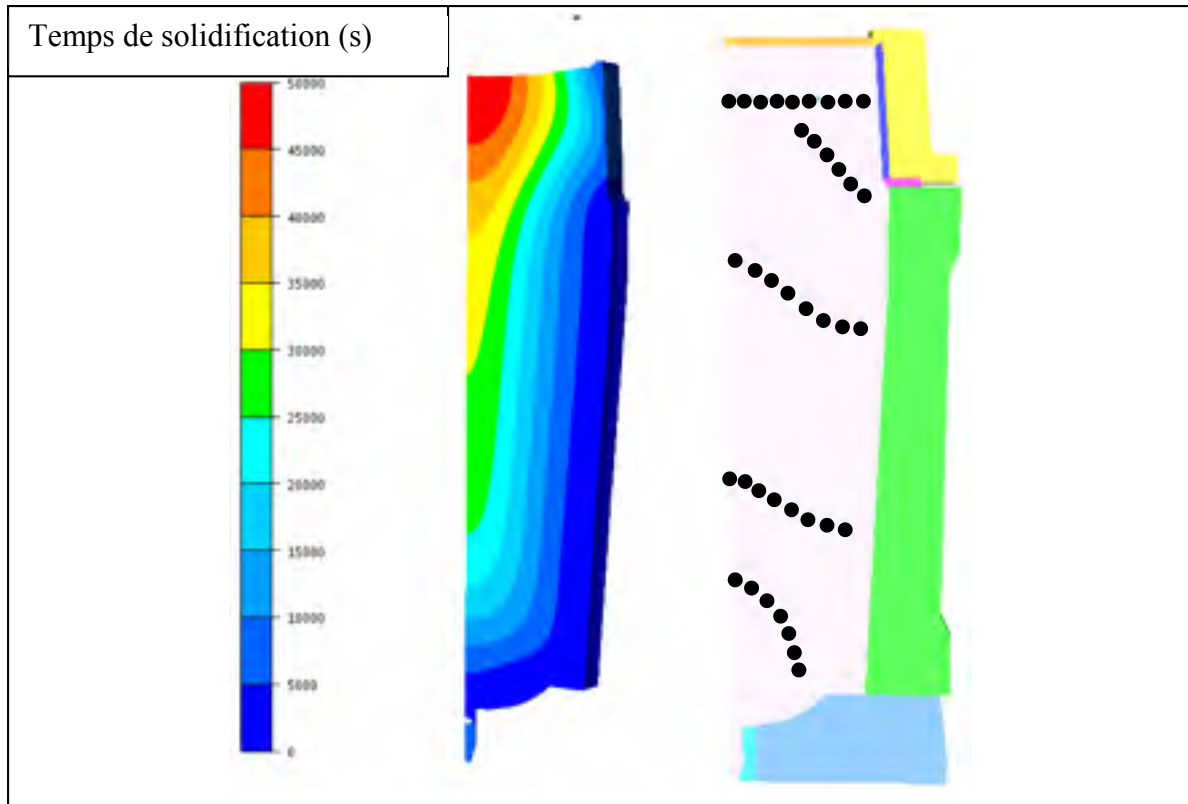


Figure 2.26 Position des capteurs dans le lingot de 40 t

## 2.6 Conclusion partielle

Il est très rare dans la littérature de voir des résultats expérimentaux sur les lingots de grandes tailles dus aux ressources que cela demande. De plus si ces résultats existent, ces derniers seront sur des lingots de plus petit tonnage (Ed J. Pickering et al., 2015; Rutskii, Gamanyuk, Zyuban, Petrova, & Palatkina, 2017) et ainsi avec généralement des régimes de refroidissement différents ayant des vitesses de refroidissement plus rapides.

Cette partie a permis de dresser la stratégie à choisir afin de mesurer le comportement des paramètres du matériau de Finkl Steel (Sorel), en fonction de la vitesse de refroidissement et ensuite d'adapter numériquement les lois de comportement de ces paramètres sur le logiciel de simulation par éléments finis, Thercast®.

- L'espace interdendritique et les températures de transition liquide-solide ( $T_{liq}$  et  $T_{sol}$ ) sont étudiés à partir d'échantillons prélevés dans une masselotte et analysés avec un spectromètre optique ARL 4460. Les SDAS seront étudiés par attaque chimique avec l'aide de la solution d'Oberhoffer puis analysés à l'aide d'un microscope optique AmScope. La littérature n'aborde pas le comportement des SDAS pour des vitesses aussi faibles, ce qui sera un élément disruptif par rapport à ce qui a été fait.
- Les températures de transition liquide-solide seront mesurées par analyse thermique à l'aide d'un DSC Netsch 404 F1 Pegasus.
- Un premier modèle géométrique de solidification unidirectionnelle a été conçu afin d'adapter les paramètres en fonction de la vitesse de refroidissement et de réduire les phénomènes macroscopiques qui peuvent être rencontrés dans les lingots de grande taille. Le maillage a été dimensionné par rapport aux indicateurs de la littérature tels que  $\overrightarrow{grad}(V_l)$ ,  $\overrightarrow{grad}(f_l)$  et  $\overrightarrow{grad}(r_{carbone})$  (Gouttebroze, 2005). De plus, il est intéressant de noter qu'utiliser un modèle unidirectionnel pour étudier l'influence de la vitesse de refroidissement sur la macroségrégation dans les lingots de grande taille est une approche nouvelle.
- Le deuxième modèle est le modèle utilisé par le laboratoire CM2P pour simuler la solidification d'un lingot 40 t. D'après les résultats obtenus sur  $\overrightarrow{grad}(r_{carbone})$ , le maillage n'est pas suffisamment fin pour prédire des tendances de macroségrégation. La puissance de calcul limite et conditionne l'utilisation de ce modèle associé à cette taille de maille. Cependant la prochaine partie pourra traiter de la validité des prédictions en les comparant aux ressources expérimentales.

## **CHAPITRE 3**

### **Résultats et discussions**

#### **3.1 Objectifs**

L'objectif de ce travail est d'étudier l'influence de la vitesse de refroidissement sur les paramètres caractérisant la zone de transition ainsi que de leur influence sur la macroségrégation dans le logiciel de simulation numérique Thercast®. Une première partie sera basée sur la détermination des vitesses de refroidissement dans les lingots de 40 t et de leur validation expérimentale, réalisée à l'aide de thermocouples positionnés sur la surface extérieure du moule. Dans un second temps, des calculs numériques des paramètres thermophysiques seront présentés à l'équilibre et para-équilibre thermodynamique afin de comparer les propriétés de l'alliage utilisé par l'industriel et du 25CrMo4 appartenant à la base de données de Thercast®. Ensuite, les résultats des essais expérimentaux seront illustrés. Ces derniers ont pour but d'établir une loi de comportement des paramètres du matériau choisis (SDAS, liquidus et solidus) en fonction des vitesses de refroidissement rencontrées dans des lingots de grande taille. Enfin, les résultats des simulations numériques du modèle de solidification unidirectionnelle et du lingot de 40 t seront présentés.

#### **3.2 Champs des vitesses de refroidissement dans un lingot de 40 t**

Afin de s'assurer de la validité des prédictions thermiques lors de la solidification du lingot de 40 t, une stratégie de validation a été construite. Trois thermocouples ont été fixés sur la surface extérieure du moule à différentes hauteurs (Figure 3.1). Ensuite, ces températures ont été comparées avec les températures mesurées au cours du temps dans la simulation numérique. Le relevé des températures a été réalisé après le remplissage, soit 1 739s (environ 28 min). La tendance générale de l'évolution des températures au fur et à mesure de la solidification est similaire avec un maximum en température proche des 21 000 s (environ 5 h 50). Cependant, un décalage d'environ 50°C d'amplitude est observable sur ces résultats (Figure 3.2). Cet écart peut provenir de multiples sources :

- Le fichier du métal est le fichier 25CrMo4, même si ses propriétés physiques sont proches de l'alliage de l'industriel, il y a un écart (partie 3.3),
- Les propriétés de la fonte qui constitue le moule ne sont pas connues. Il faut rappeler que ses propriétés ne sont pas fournies par l'industriel,
- Les coefficients d'échange thermique : conduction entre le métal et le moule, ou convection et émissivité pour le métal et l'air sont trop éloignés par rapport à ceux des lingots de Finkl Steel (Sorel).

Toutefois, cet écart est acceptable par rapport à la totalité des incertitudes connues, d'autant que l'intérêt de cette étude se porte sur la cinétique de refroidissement pendant toute la solidification.

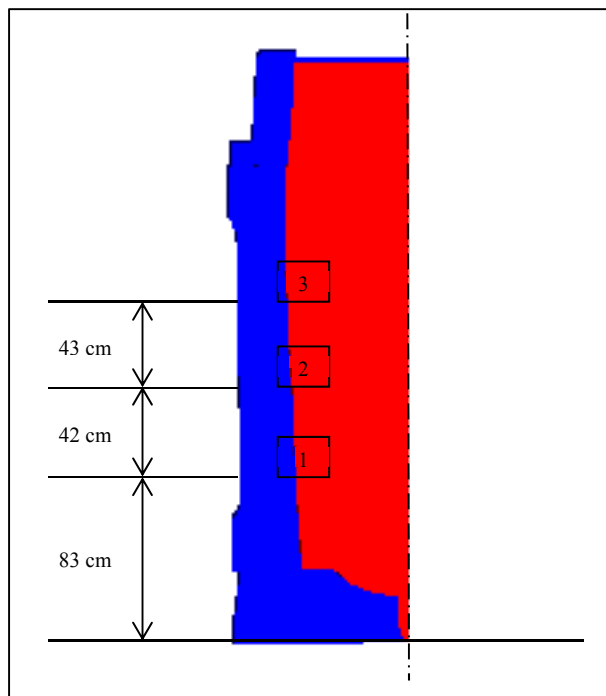


Figure 3.1 Position des thermocouples sur le lingot de 40 t

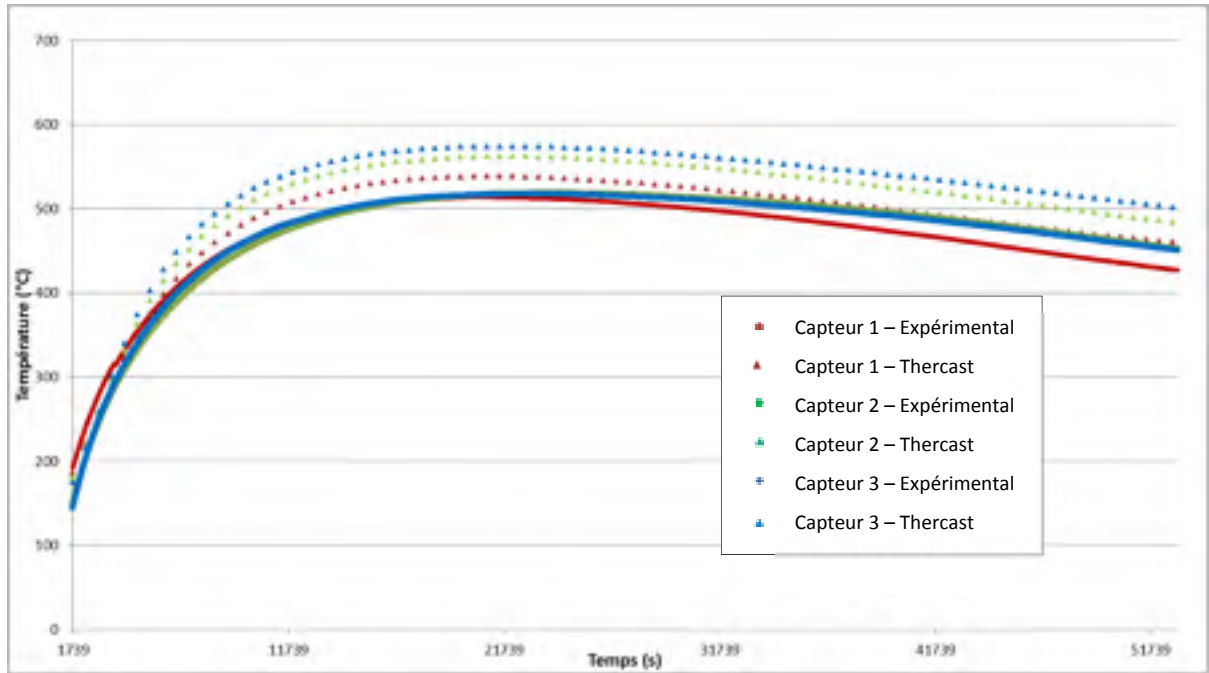


Figure 3.2 Comparaison des valeurs thermocouples numériques et expérimentales

Grâce à la validation du régime thermique lors de la solidification du lingot 40 t, il est possible par la suite de tracer les temps de solidification. Thercast® permet d’afficher le temps que met le métal à atteindre la température du liquidus ( $t_{\text{début}}$ ) et le temps de solidification ( $t_f$ ) lorsque le métal passe de la température du liquidus vers le solidus (Figure 3.3). Ainsi :

$$t_{\text{total}} = t_{\text{début}} + t_f \quad (3.1)$$

La vitesse de refroidissement lors de la solidification sera supposée constante comme il a été fait dans la littérature par Won & Thomas, 2001, ainsi connaissant l’intervalle de solidification du 25CrMo4 et le temps que met celui-ci à se solidifier, il est possible d’en déduire la vitesse de refroidissement (partie 1.3.3.5).

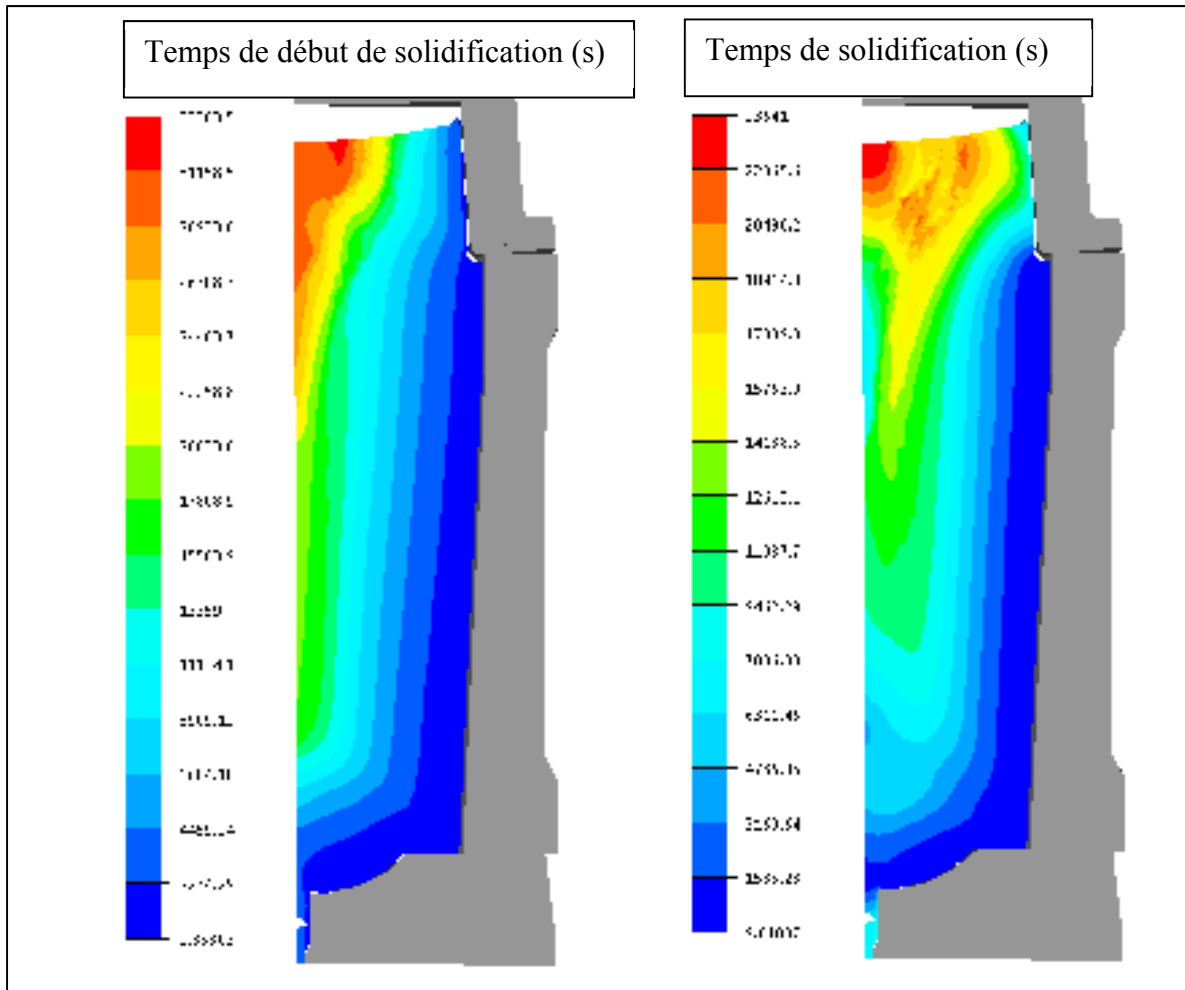


Figure 3.3 Simulation du temps de solidification dans un lingot

### 3.3 Estimation numérique des paramètres des matériaux

La base de données de Thercast®, dont l'alliage 25CrMo4 fait partie, a été construite à partir de logiciels numérique d'équilibre thermodynamique comme JMatPro®. (Transvalor, 2016) Le premier objectif de cette étude est de discuter des différentes prédictions réalisées avec deux logiciels, JMatPro® et Factsage®. Tout cela dans l'optique de s'assurer d'une prédiction numérique similaire. Ensuite, les propriétés des échantillons (3DC3T et 1CB3T) récupérés sur le lingot afin de réaliser les essais expérimentaux seront établies avec le logiciel JMatPro®. Leurs propriétés seront comparées à celles du 25CrMo4 notamment pour l'échantillon 3DC3T, qui représente la composition nominale de l'alliage de l'industriel. Enfin, JMatPro® permet de

réaliser des essais au para-équilibre en rentrant une vitesse de refroidissement et une taille de grain. Des essais seront réalisés à différentes vitesses de refroidissement pour voir l'influence sur les différents paramètres.

### 3.3.1 Estimation de paramètres à l'équilibre

#### 3.3.1.1 Comparaison des logiciels

Comme la base de données de Thercast est réalisée grâce à JMatPro®, l'utilisation d'un logiciel tiers (Factsage®) permet de vérifier la prédiction des propriétés des matériaux à l'équilibre thermodynamique. Une analyse des différents résultats a été faite sur la composition nominale de l'alliage de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T). Les deux logiciels prévoient une solidification à l'équilibre passant par la formation de ferrite  $\delta$  puis de l'austénite (Figure 3.4). Les fractions de la phase liquide sont confondues prévoyant des températures de liquidus égales (1490°C). Un léger décalage existe en température sur les premières phases solides créées avec ainsi un décalage sur la température du solidus, 1428°C pour JMatPro® et 1422°C pour Factsage® (Figure 3.4). Cette différence se répercute sur la capacité thermique massique (

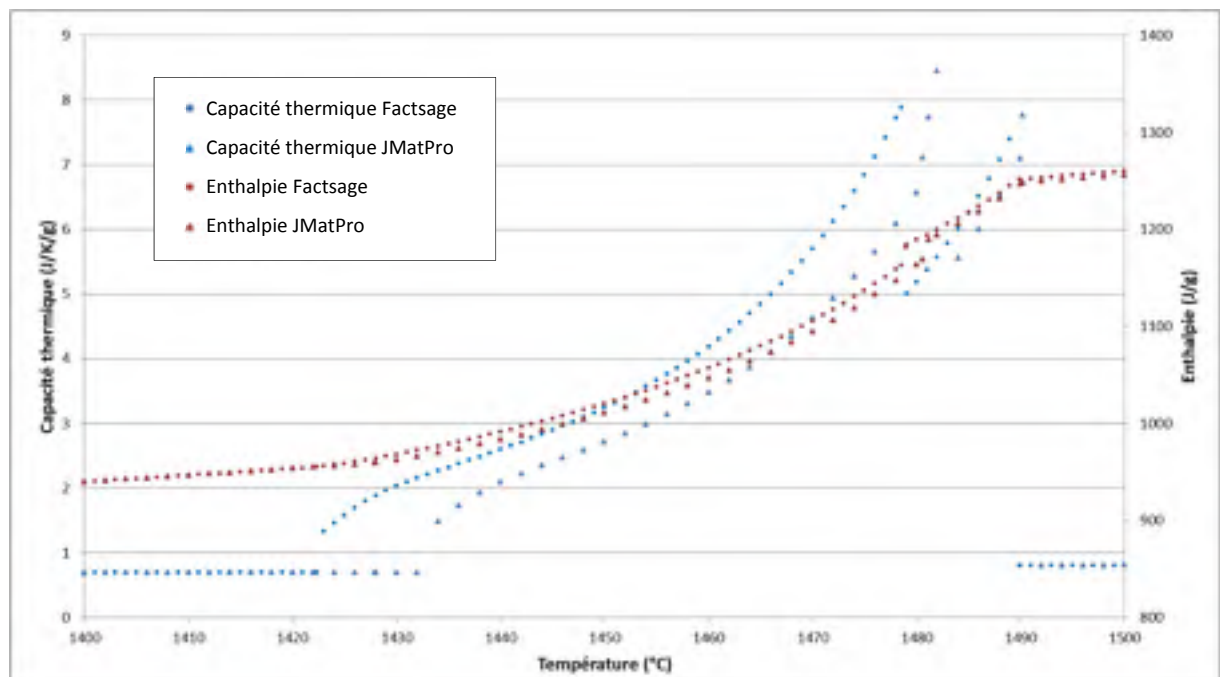


Figure 3.5). En effet, les propriétés thermophysiques découlent directement de l'estimation des

phases en appliquant une loi des mélanges sur les fractions de phases en présence. Cependant, la capacité thermique massique lors de la solidification ne sera pas utilisée dans le cadre de cette étude, l'enthalpie est la seule quantité effective lors du changement d'état. En effet, le fichier des propriétés dans le logiciel Thercast® requiert une capacité thermique massique hors changement de phase et une enthalpie lors du changement de phase. Ce qui est intéressant ici est donc l'enthalpie de transformation liquide-solide.

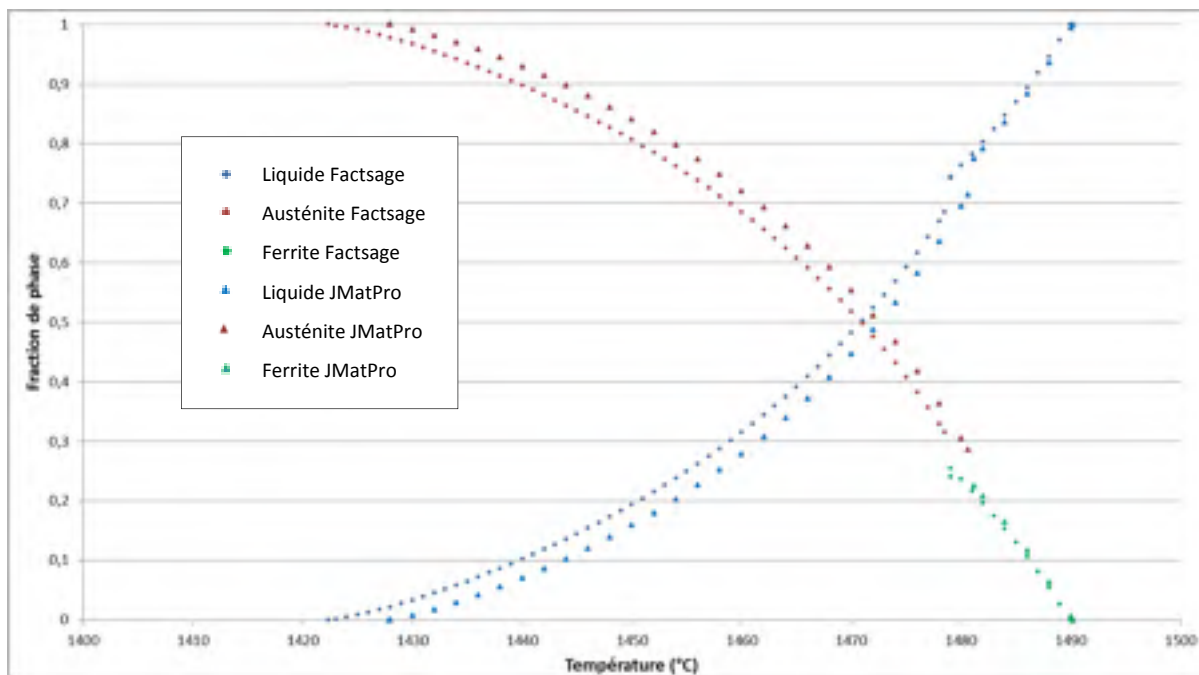


Figure 3.4 Fractions des phases lors de la solidification de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T) avec Factsage® et JMatPro®



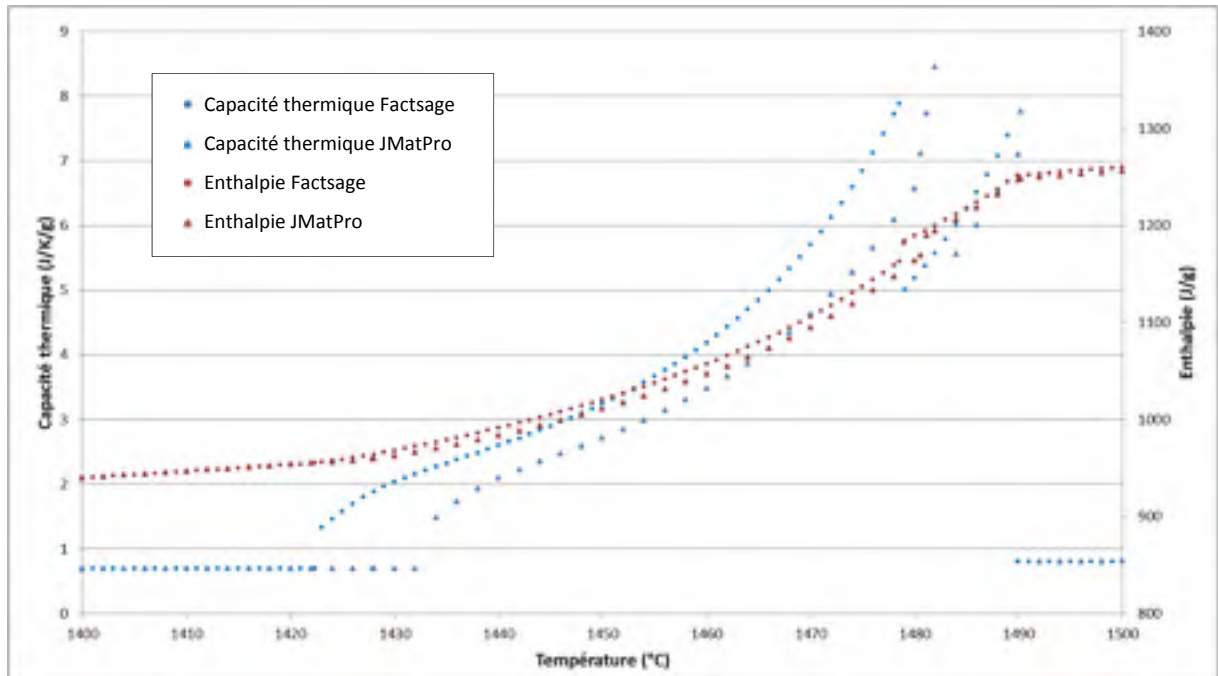


Figure 3.5 Capacité thermique massique et Enthalpie de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T) avec Factsage® et JMatPro®

### 3.3.1.2 Comparaison des propriétés des différents alliages

Ensuite les comparaisons des propriétés thermophysiques sur les différentes compositions utilisées ont été réalisées. Les fractions liquides des trois alliages sont plus ou moins différentes (Figure 3.6). En effet, le 25CrMo4 est l'élément avec les températures de transformation (liquidus et solidus) les plus élevées et l'intervalle de solidification le moins large (Figure 3.6). Ceci est facilement explicable si on fait l'hypothèse que le carbone est l'élément le plus influent sur les températures de transformation et les intervalles de solidification. En effet, plus le taux de carbone est élevé, plus les températures de liquidus et solidus seront faibles et plus l'intervalle de solidification sera grand si on se réfère au diagramme Fe-C à l'équilibre (partie 1.3.3.4). L'écart des températures de transformation entre l'alliage de l'industriel et le 25CrMo4 est d'une dizaine de degré, devant l'erreur des mesures expérimentales (partie 3.5), cet écart est négligeable (Bleckmann et al., 2015).

Il est également à noter que la capacité thermique massique du 25CrMo4 est discontinue à la transformation (Figure 3.7). Comme il a été mentionné précédemment, cette donnée est tirée de Thercast® ne prenant pas en compte la cinétique de transformation entre le liquidus et le solidus. Le logiciel n'utilise que l'enthalpie de transformation également appelée chaleur latente de changement d'état. De plus, il est important de noter que par définition, la grandeur lue sur le tracé de la capacité thermique en fonction de la température pendant la solidification ne peut pas être interprétée comme une capacité thermique. Enfin, le constat est similaire aux températures de transformation pour les enthalpies du 25CrMo4 et de l'acier de l'industriel qui sont assez proches par rapport aux erreurs expérimentales (Figure 3.8) (Tableau 3.1).

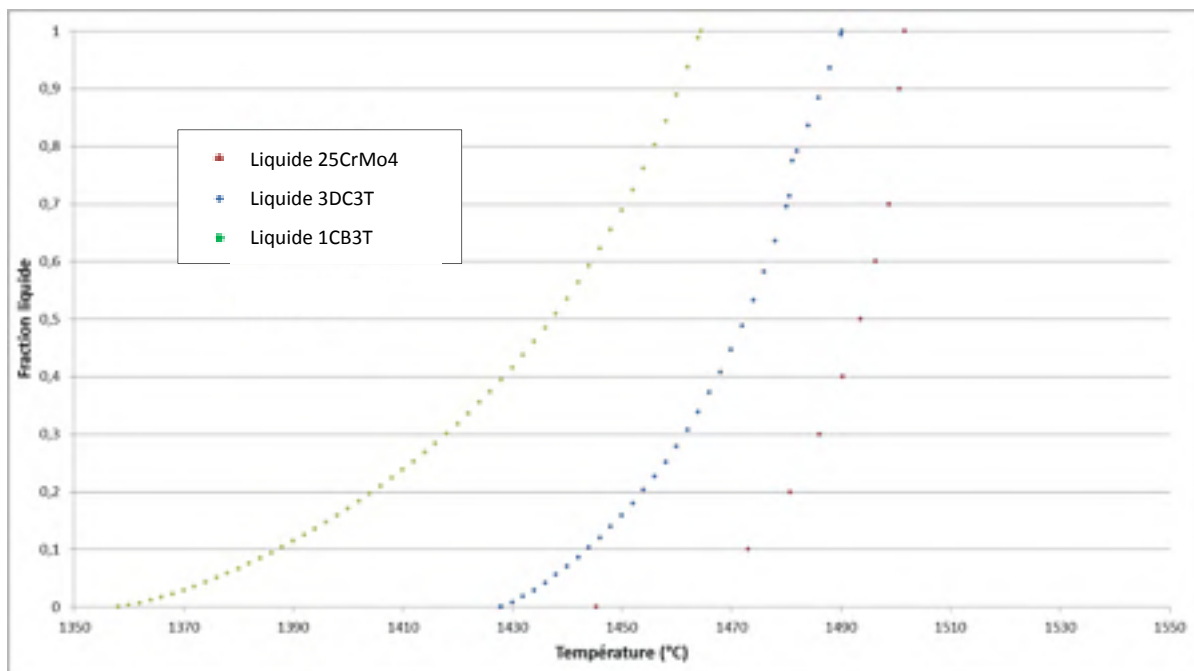


Figure 3.6 Fraction liquide pour les compositions 25CrMo4 (rouge), 3DC3T (bleu) et 1CB3T (vert)

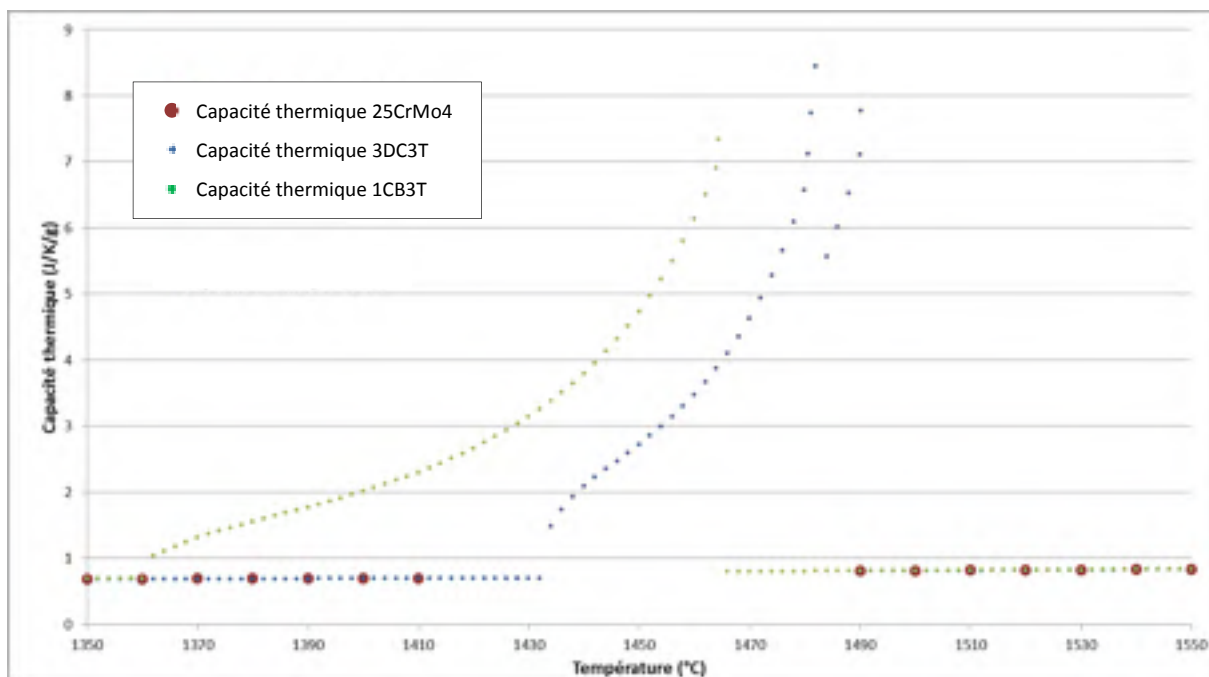


Figure 3.7 Capacité thermique massique pour les compositions 25CrMo4 (rouge), 3DC3T (bleu) et 1CB3T (vert)

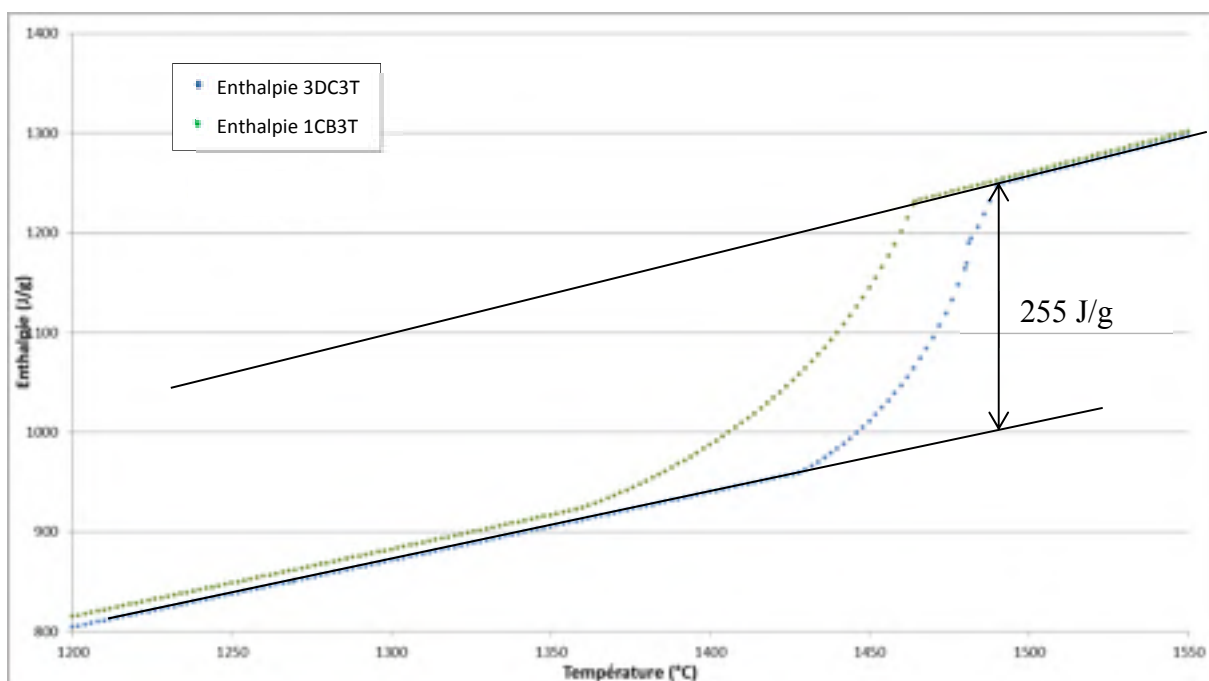


Figure 3.8 Enthalpie pour les compositions 3DC3T (bleu) et 1CB3T (vert)

Tableau 3.1 Chaleur latente de fusion  
pour les compositions 25CrMo4, 3DC3T  
et 1CB3T

<b>L<sub>25CrMo4</sub> (J/g)</b>	265
<b>L<sub>3DC3T</sub> (J/g)</b>	255
<b>L<sub>1CB3T</sub> (J/g)</b>	232

Il faut rappeler que le 25CrMo4 est un matériau communément utilisé par Thercast® dans sa base de données, cependant il faut être très prudent par rapport à la validité des propriétés du matériau dans la base de données. En effet, d'après la documentation du développeur (Transvalor, 2016), les propriétés thermophysiques sont extraites du logiciel thermodynamique JmatPro®. Ainsi la composition de cet alliage a été implantée dans le logiciel JMatPro® afin de vérifier les calculs thermodynamiques avec ce qui est donné par la base de données de Thercast®, notamment sur la conductivité thermique de l'alliage à l'équilibre thermodynamique. On peut voir clairement ci-dessous, une différence entre la conductivité thermique du 25CrMo4 donnée par la base de données de Thercast® et celle calculée avec JmatPro®, une différence de 28% est observable à haute température (1600°C). De plus, il est intéressant de voir que le logiciel ne fait pas de distinction au-dessus de la température d'austénitisation entre les deux conductivités thermiques car celles sont calculées par une loi des mélanges avec les phases formées après solidification.

Afin de s'assurer que les propriétés du matériau utilisé sont valables, la littérature a permis de s'assurer de la validité des paramètres utilisés (Kvíčala, Frydryšek, & Štamborská, 2015). La conductivité thermique sera pris en exemple, selon la comparaison de Kvíčala et al., 2015 par JmatPro® correspond à la conductivité thermique mesurée à haute température. Cependant, il est à noter que la base de données de Thercast® estime une conductivité thermique trop haute (Kvíčala et al., 2015) (Figure 3.9).

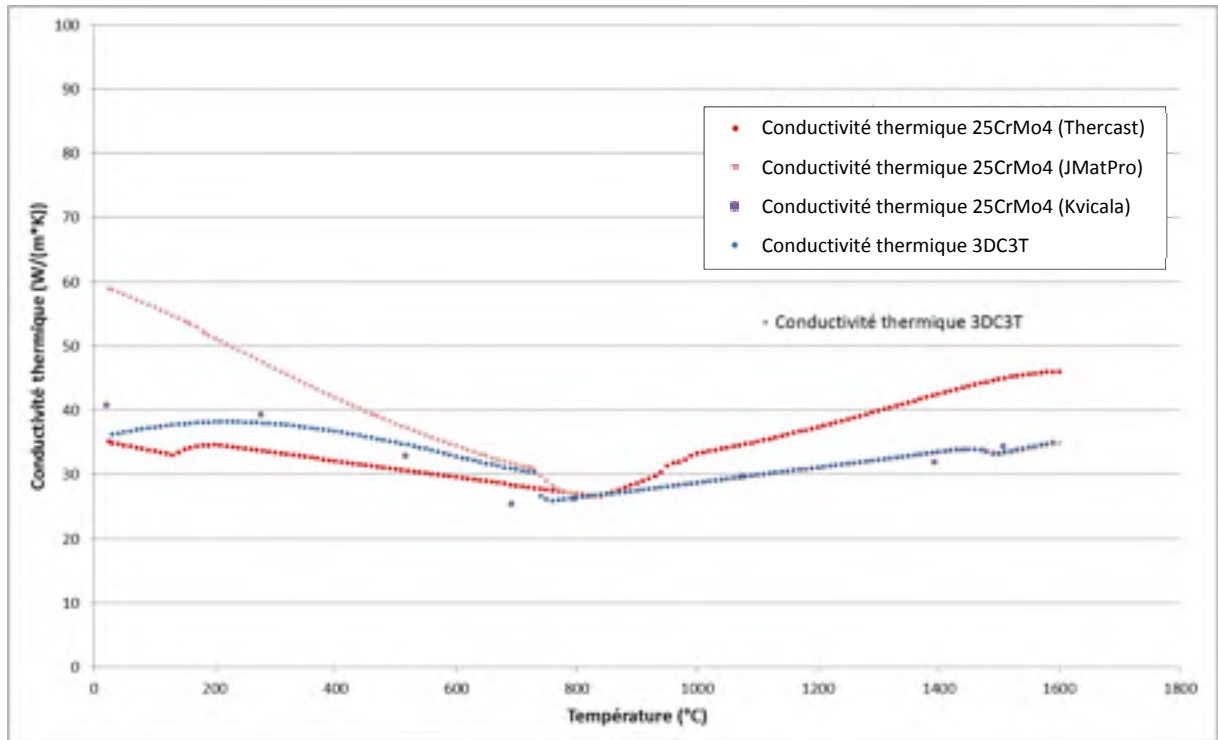


Figure 3.9 Conductivité thermique du 25CrMo4 d'après Thercast, JMatPro, et l'expérimental (Kvíčala et al., 2015) et conductivité thermique de l'acier de Finkl Steel (Sorel) (3DC3T)

### 3.3.2 Estimation de paramètres au para-équilibre

JMatPro® permet de simuler le refroidissement d'un acier à vitesse de refroidissement continue avec une taille de grain donnée. Des essais avec une taille de 200  $\mu\text{m}$  pour la taille de grain et trois vitesses de refroidissement ont été réalisés durant les travaux préliminaires afin de tester les capacités du logiciel. Les trois vitesses de refroidissements choisies sont respectivement 1, 0.1 et 0.01  $^{\circ}\text{C/s}$ . Comme le montre la Figure 3.10, les phases en présence sont bien calculées par rapport à la vitesse de refroidissement mais seulement lorsque le métal est en transition sous la température d'austénitisation (i.e. austénite est la seule phase en présence). Après discussion avec le développeur de JMatPro®, le logiciel n'est capable de prédire les transformations de phase qu'à partir d'interpolations sur des diagrammes TRC (Transformation Refroidissement Continu) enregistré dans l'algorithme. Ces diagrammes sont définis jusqu'à la température d'austénitisation. Dans le cas présent de l'étude, l'acier est

chauffé jusqu'à l'état liquide. Le besoin est donc de connaître le comportement cinétique des phases en présence à la transition liquide-solide.

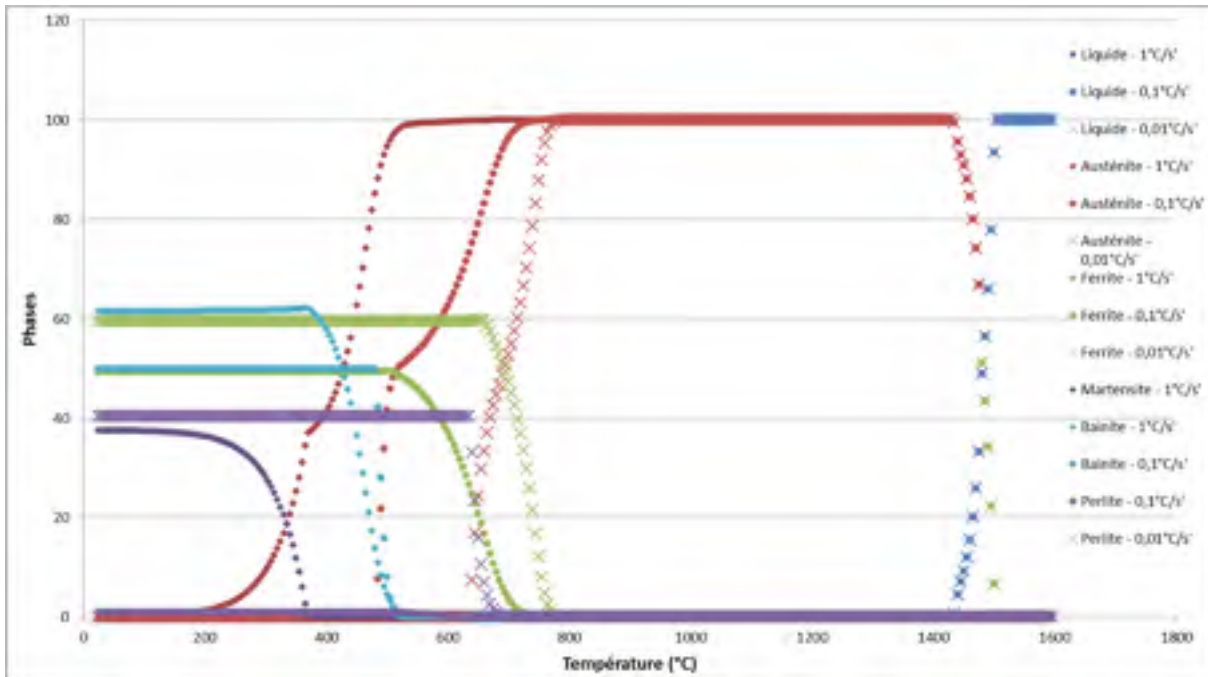


Figure 3.10 Phases en présence lors du refroidissement à 1°C/s (losange), 0.1°C/s (rond) et 0.01°C/s (croix)

### 3.4 Analyse de la morphologie et dimensionnelle des dendrites

L'objectif de cette partie est de discuter à partir des micrographies relevées dans la partie du lingot industriel découpé (masselotte + 30 cm en haut du lingot), de la taille de l'espace interdendritique secondaire (SDAS) en fonction de la vitesse de refroidissement, de la surface vers le centre du lingot. L'avantage d'établir ce type de loi sur un lingot aussi large est de pouvoir avoir des vitesses de refroidissement très basses et ainsi établir une loi grâce à simulation numérique prévoyant le refroidissement d'un lingot de 40 t (partie 3.2). La première approche sera de sélectionner les micrographies intéressantes afin de pouvoir établir la loi en question.

### 3.4.1.1 Espaces interdendritiques dans la masselotte d'un lingot de 40 t

- **Observation sur la masselotte entière**

Comme il a été mentionné dans le chapitre 2, une sélection a été réalisée sur les échantillons à analyser dans la masselotte du lingot de 40 t. Une étude a été faite afin de se rendre compte des différentes morphologies de dendrites qui existent dans la masselotte d'un lingot de grande taille. En effet, avant de discuter sur une éventuelle loi d'évolution des dendrites par rapport à la vitesse de refroidissement, il a fallu se poser la question de l'exploitabilité des mesures. Trois catégories peuvent être représentées :

- Les micrographies non-exploitable : L'agent chimique choisi n'est pas forcément adapté à la phase en présence ou à la composition chimique locale.
- Les micrographies avec des grains globulaires (Figure 3.11) : ces grains sont non-dendritiques donc ne possèdent pas d'espace interdendritique secondaire

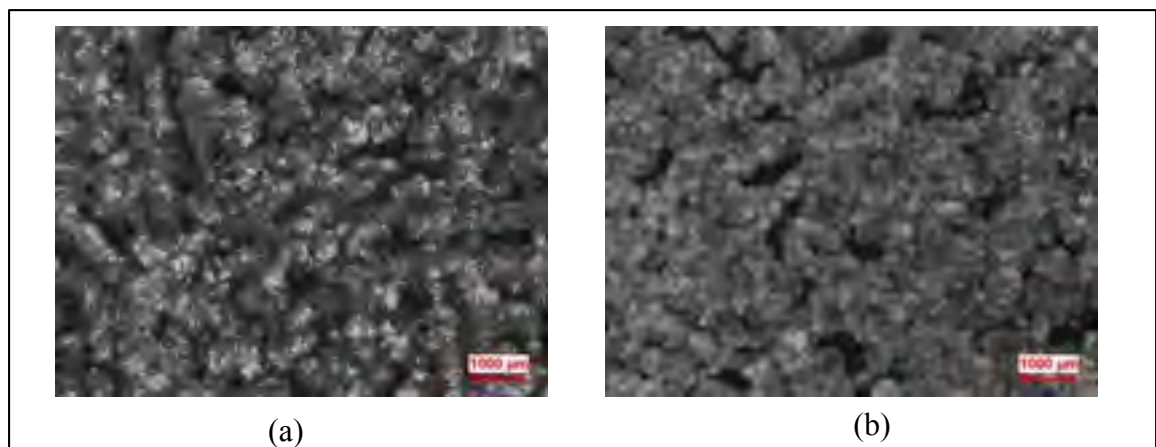


Figure 3.11 Micrographies de l'échantillon (a) 1CA2T et (b) 2BE2T

- Les micrographies avec des grains dendritiques (Figure 3.12) : Des grains formés avec une structure dendritique.

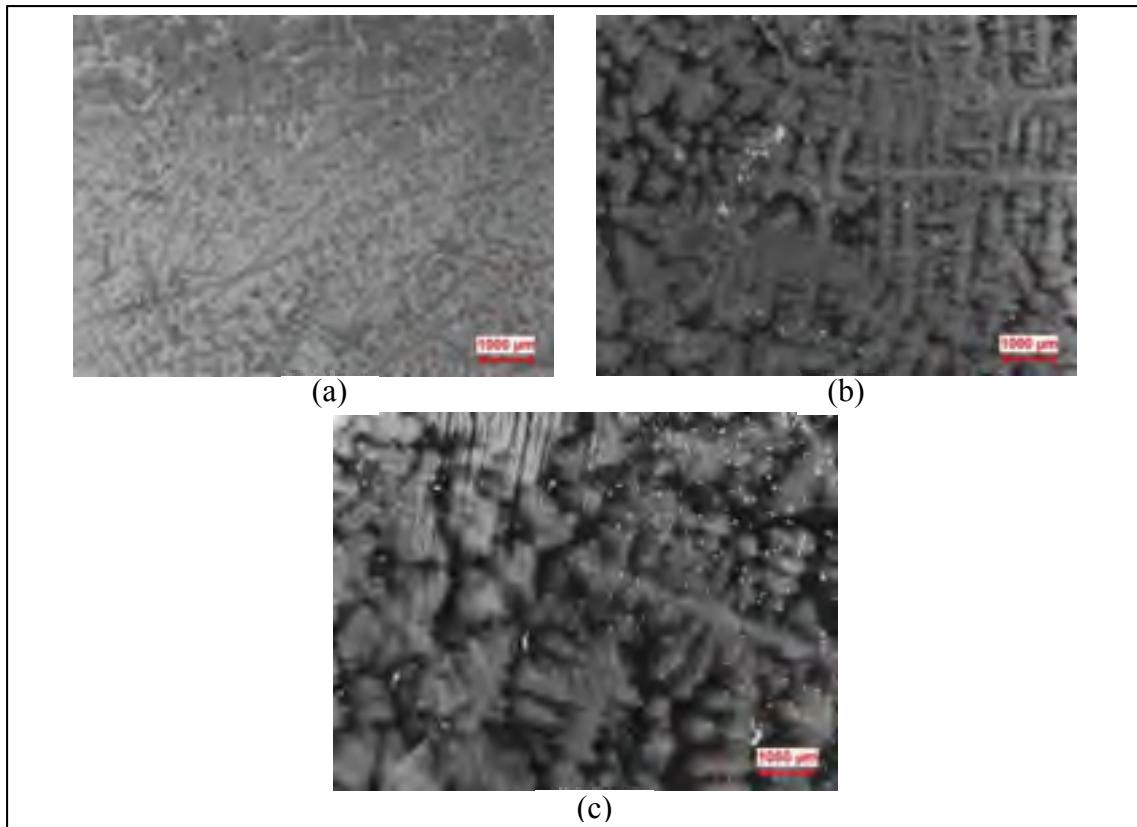


Figure 3.12 Micrographies des échantillons (a) 3AE1T, (b) 3AE3T, (c) 3BE3T

Comme il est possible de le constater, les dendrites obtenues par un microscope optique n'ont pas une définition optimale. Cependant, cette dernière est suffisante pour effectuer des mesures d'espace interdendritique. De plus, il est clair que les morphologies des dendrites peuvent ne pas être homogènes au sein d'un échantillon. Ainsi, il est difficile de conclure sur les morphologies globales avec des morphologies locales.

Après plusieurs micrographies, les résultats peuvent être exploités et répertoriés selon les catégories citées (Figure 3.13). Il est intéressant de voir que les grains globulaires se retrouvent proches du centre et dans la masselotte (1CA2T, 1CD5T, 2BE2T et 2BE5T). Ces grains connaissent des temps de refroidissement extrêmement longs et peuvent être la source également d'anciennes dendrites qui se sont cassées sous l'influence des flux thermo-solutaux (E. J. Pickering, 2013).



1AA1T	1AA2T	1AA3T	1AA4T	1AA5T	1BA1T	1BA2T	1BA3T	1BA4T	1BA5T	1CA1T	1CA2T	1CA3T	1CA4T	1CA5T	1DA1T	1DA2T	1DA3T	1DA4T
1AB1T	1AB2T	1AB3T	1AB4T	1AB5T	1BB1T	1BB2T	1BB3T	1BB4T	1BB5T	1CB1T	1CB2T	1CB3T	1CB4T	1CB5T	1DB1T	1DB2T	1DB3T	1DB4T
1AC1T	1AC2T	1AC3T	1AC4T	1AC5T	1BC1T	1BC2T	1BC3T	1BC4T	1BC5T	1CC1T	1CC2T	1CC3T	1CC4T	1CC5T	1DC1T	1DC2T	1DC3T	1DC4T
1AD1T	1AD2T	1AD3T	1AD4T	1AD5T	1BD1T	1BD2T	1BD3T	1BD4T	1BD5T	1CD1T	1CD2T	1CD3T	1CD4T	1CD5T	1DD1T	1DD2T	1DD3T	1DD4T
1AE1T	1AE2T	1AE3T	1AE4T	1AE5T	1BE1T	1BE2T	1BE3T	1BE4T	1BE5T	1CE1T	1CE2T	1CE3T	1CE4T	1CE5T	1DE1T	1DE2T	1DE3T	1DE4T
2AA1T	2AA2T	2AA3T	2AA4T	2AA5T	2BA1T	2BA2T	2BA3T	2BA4T	2BA5T	2CA1T	2CA2T	2CA3T	2CA4T	2CA5T	2DA1T	2DA2T	2DA3T	2DA4T
2AB1T	2AB2T	2AB3T	2AB4T	2AB5T	2BB1T	2BB2T	2BB3T	2BB4T	2BB5T	2CB1T	2CB2T	2CB3T	2CB4T	2CB5T	2DB1T	2DB2T	2DB3T	2DB4T
2AC1T	2AC2T	2AC3T	2AC4T	2AC5T	2BC1T	2BC2T	2BC3T	2BC4T	2BC5T	2CC1T	2CC2T	2CC3T	2CC4T	2CC5T	2DC1T	2DC2T	2DC3T	2DC4T
2AD1T	2AD2T	2AD3T	2AD4T	2AD5T	2BD1T	2BD2T	2BD3T	2BD4T	2BD5T	2CD1T	2CD2T	2CD3T	2CD4T	2CD5T	2DD1T	2DD2T	2DD3T	2DD4T
2AE1T	2AE2T	2AE3T	2AE4T	2AE5T	2BE1T	2BE2T	2BE3T	2BE4T	2BE5T	2CE1T	2CE2T	2CE3T	2CE4T	2CE5T	2DE1T	2DE2T	2DE3T	2DE4T
3AA1T	3AA2T	3AA3T	3AA4T	3AA5T	3BA1T	3BA2T	3BA3T	3BA4T	3BA5T	3CA1T	3CA2T	3CA3T	3CA4T	3CA5T	3DA1T	3DA2T	3DA3T	3DA4T
3AB1T	3AB2T	3AB3T	3AB4T	3AB5T	3BB1T	3BB2T	3BB3T	3BB4T	3BB5T	3CB1T	3CB2T	3CB3T	3CB4T	3CB5T	3DB1T	3DB2T	3DB3T	3DB4T
3AC1T	3AC2T	3AC3T	3AC4T	3AC5T	3BC1T	3BC2T	3BC3T	3BC4T	3BC5T	3CC1T	3CC2T	3CC3T	3CC4T	3CC5T	3DC1T	3DC2T	3DC3T	3DC4T
3AD1T	3AD2T	3AD3T	3AD4T	3AD5T	3BD1T	3BD2T	3BD3T	3BD4T	3BD5T	3CD1T	3CD2T	3CD3T	3CD4T	3CD5T	3DD1T	3DD2T	3DD3T	3DD4T
3AE1T	3AE2T	3AE3T	3AE4T	3AE5T	3BE1T	3BE2T	3BE3T	3BE4T	3BE5T	3CE1T	3CE2T	3CE3T	3CE4T	3CE5T	3DE1T	3DE2T	3DE3T	3DE4T

Figure 3.13 Carte des échantillons analysés avec les micrographies non-exploitable (rouge), les micrographies avec des grains globulaires (bleu) et les micrographies avec des grains dendritiques (vert)

- **Observation le long d'un rayon du lingot**

L'intérêt d'avoir analysé la ligne sur un rayon du lingot est donc d'aider à faire une corrélation entre la vitesse de refroidissement dans l'intervalle de solidification et la croissance de l'espace interdendritique secondaire. Sur cette ligne, 3 échantillons sont marqués comme grains globulaires (3AE2T, 3BE4T et 3BE5T). Il est intéressant de constater que la zone de peau regroupe des morphologies de dendrites colonnaires très fines avec une direction privilégiée correspondant aux articles traitant de la morphologie des dendrites dans les lingots de grandes tailles (Hoó et al., 2006; Il'inskii et al., 2008; Rutskii et al., 2017) (Figure 3.14). Puis, l'échantillon 3AE2T est une transition de cette zone de peau, la morphologie des grains est d'avantage globulaire vers une croissance colonnaires (Figure 3.14).

Il est possible de voir des croissances de grains dendritiques colonnaires mais bien souvent la croissance n'a pas de direction privilégiée ce qui pourrait s'expliquer par la présence de grains équiaxes dendritiques assez développés comme le montre Rutskii (Rutskii et al., 2017) (Figure 3.14).

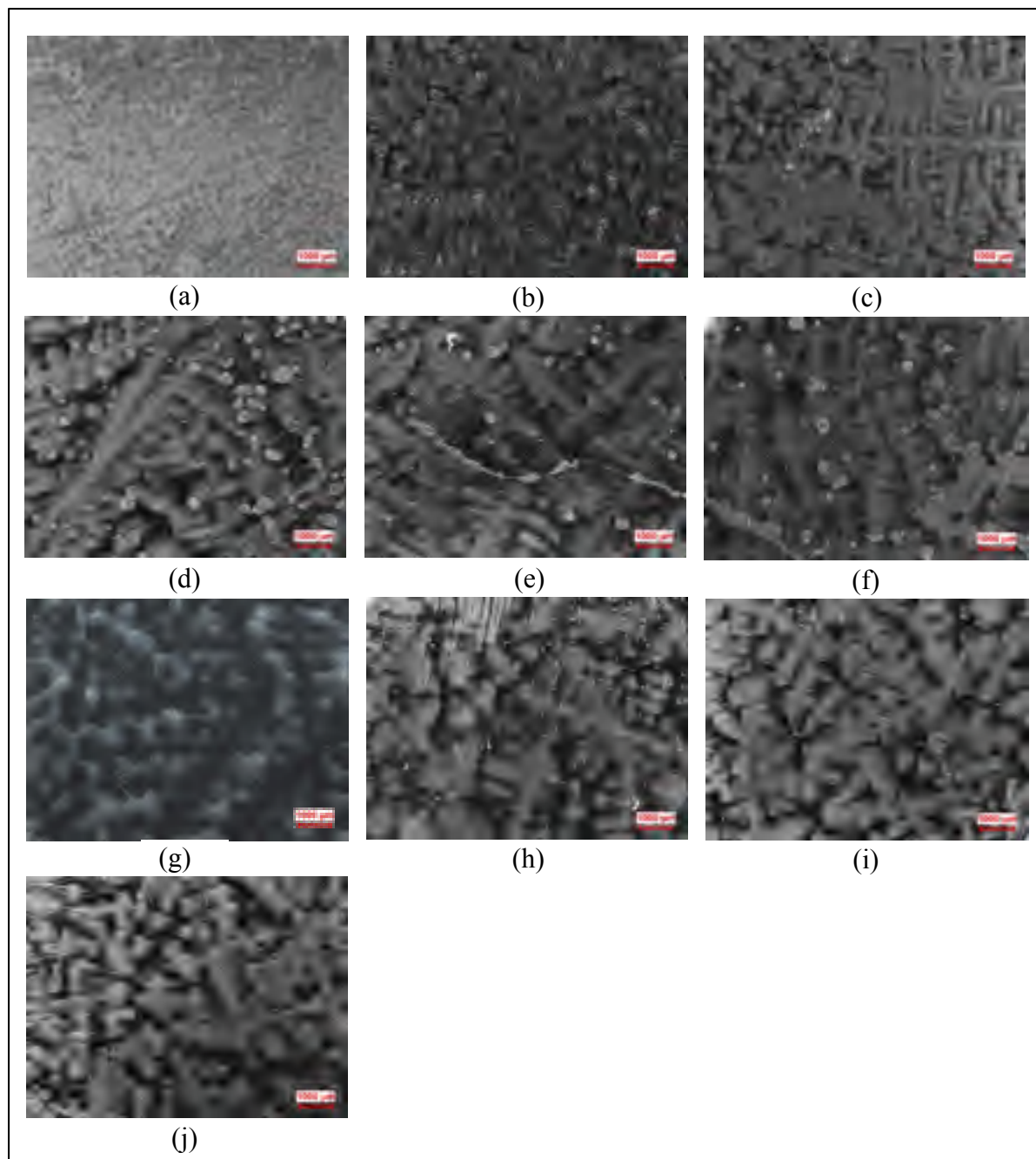


Figure 3.14 Micrographies des échantillons (a) 3AE1T, (b) 3AE2T, (c) 3AE3T, (d) 3AE4T, (e) 3AE5T, (f) 3BE1T, (g) 3BE2T, (h) 3BE3T, (i) 3BE4T, (j) 3BE5T

### 3.4.1.2 Comportement de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la vitesse de refroidissement

Grâce aux micrographies retenues et à la méthode décrite dans la partie 3.4.1.2, il est possible de tracer une loi d'évolution des dendrites en fonction du rayon du lingot. Les échantillons sont au nombre de 10 et ont une largeur d'environ 70 mm chacun, ce qui permet de tracer une courbe des SDAS en considérant ces mesures espacées de 70 mm chacune (Figure 3.15). La microstructure de l'échantillon 3AE2T présente des grains globulaires et n'est donc pas répertoriée sur cet échantillonnage. Les échantillons 3BE4T et 3BE5T présentent des grains dendritiques mais ne présente pas assez de branches principales exploitables pour réaliser un nombre suffisant de mesures (5 mesures) (Figure 3.15). Ainsi le tracé a été réalisé sur les 7 mesures restantes du rayon.

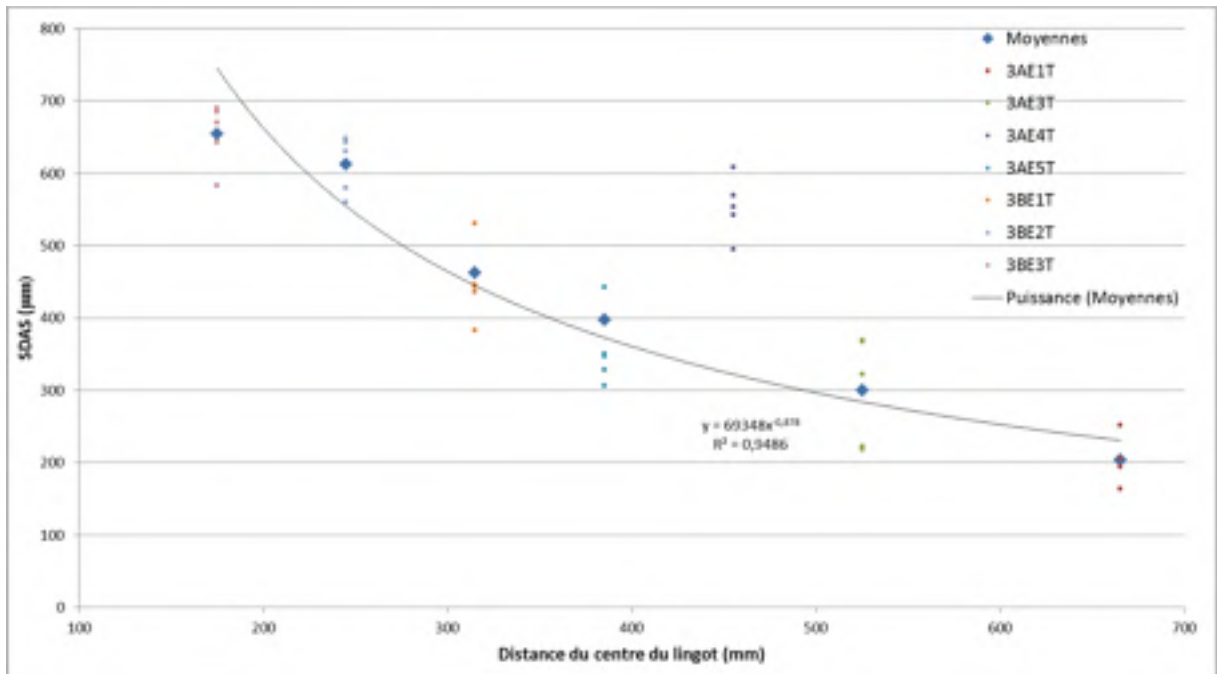


Figure 3.15 SDAS en fonction de la distance du centre du lingot de 40 t

Rutskii et al., 2017 ont établi des mesures suivant le rayon de deux lingots de 24,2 t avec une composition d'acier similaire mais avec plus de Nickel (3,13 et 3,20 m.% Ni). Ce lingot est donc moitié moins lourd que celui de l'étude. Il est intéressant de voir que leur loi d'évolution

suit une loi logarithmique par rapport au rayon, ce qui va à l'encontre des lois proposées par Jacobi & Wünnenberg, 1999; Senk, Engl, Siemon, & Stebner, 1999; Weisgerber et al., 1999; Won & Thomas, 2001, qui sont des lois puissance en fonction de la vitesse de refroidissement. Cette différence peut s'expliquer par la différence de régime thermique qui existe sur les lingots. Ainsi, plus la source de chaleur (i.e. la masselotte) a une inertie thermique importante plus les SDAS auront tendance à croître rapidement par rapport au rayon du lingot. Il est possible d'ailleurs de constater sur la Figure 3.16 qu'une poche au centre avec des temps de refroidissement plus courts, donc des vitesses de refroidissement plus rapide se crée. Si cette poche s'élargie, la croissance des dendrite sera moindre par rapport au rayon. Il serait donc intéressant d'obtenir de l'article de Rutskii et al., 2017, la vitesse de refroidissement lors de la solidification en fonction de la distance des parois du lingot. De plus, des variations existent sur le rayon du lingot, la valeur de  $3AE4T$  est une valeur aberrante par rapport aux valeurs générales et celle-ci est donc écartée. Cette variation soudaine peut être expliquée par les possibles inclusions qui existent comme les oxydes, les sulfures ou les oxysulfures (Rutskii et al., 2017). Rutskii et al. montrent que l'ajout d'inoculants permet de faire une corrélation entre la diminution des tailles des inclusions et l'homogénéité des SDAS le long du rayon du lingot (Rutskii et al., 2017). En effet, ces inoculants (billes d'acier solide) permettent d'accroître la vitesse de solidification, diminuer la macroségrégation et éviter les porosités dues au retrait solide (Rutskii et al., 2017). Pour aller plus loin il serait intéressant, d'essayer de faire des mesures après l'ajout d'inoculant ou alors de faire des mesures dans la zone inférieure du lingot 40 t qui est une zone plus pauvre en inclusion.

Ensuite, grâce à la simulation thermique obtenue sur le lingot de 40 t en partie 3.2, une superposition a été faite entre les vitesses de refroidissements moyennes lors de la solidification (calculées à partir du temps de solidification  $t_f$ ) et les échantillons récupérés sur la masselotte (Figure 3.13). Cette superposition a été réalisée à partir des cotes connues telles que la distance sous la masselotte (30 cm) et l'épaisseur coupée sur la surface d'environ 5 cm. Les échantillons sont supposés de même taille sur toute la carte d'échantillonnage et l'alliage 25CrMo4 a un comportement similaire lors du refroidissement à l'alliage utilisé par l'industriel. Cette dernière hypothèse peut être confirmée par rapport à la comparaison entre les mesures

expérimentales des thermocouples et les mesures numériques réalisée en partie 3.2 avec des régimes de refroidissement similaires. Il est à noter également que la vitesse de solidification est calculée à partir de l'intervalle de solidification du 25CrMo4 qui est utilisé dans la simulation.

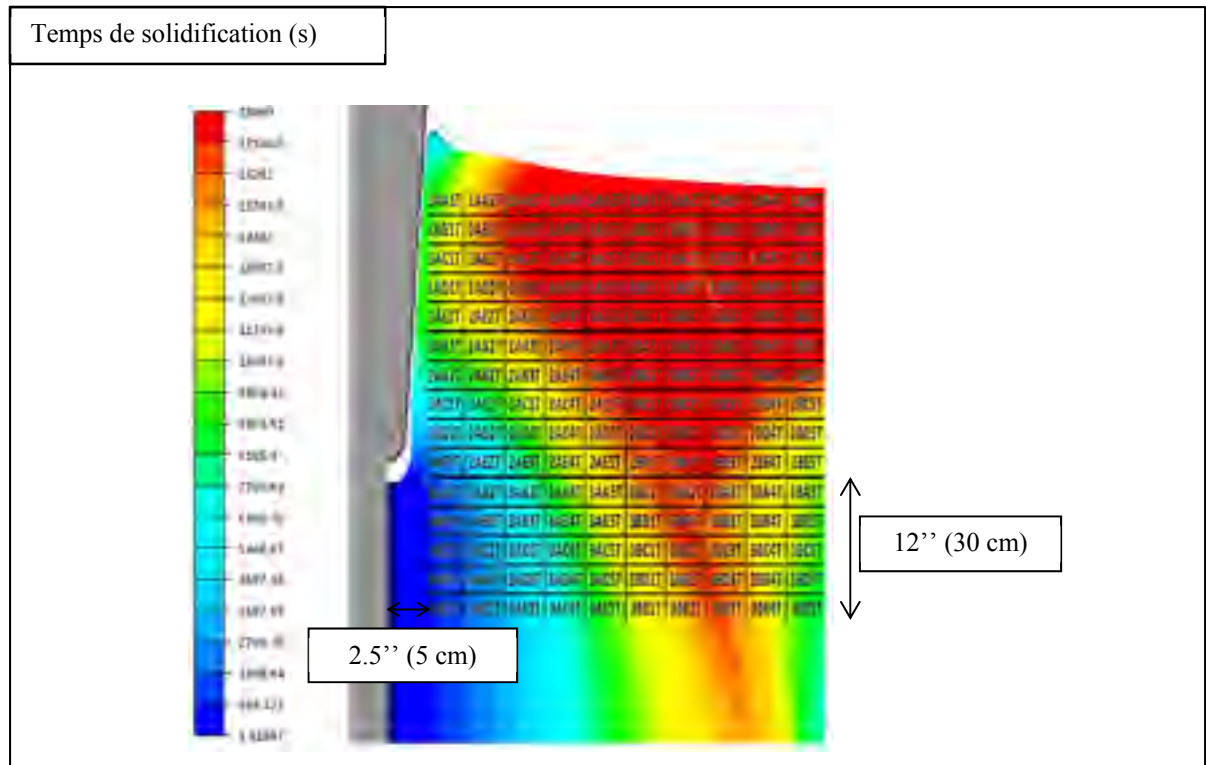


Figure 3.16 Superposition de la carte d'échantillonnage et des vitesses de refroidissement moyennes lors de la solidification d'un lingot de 40 t

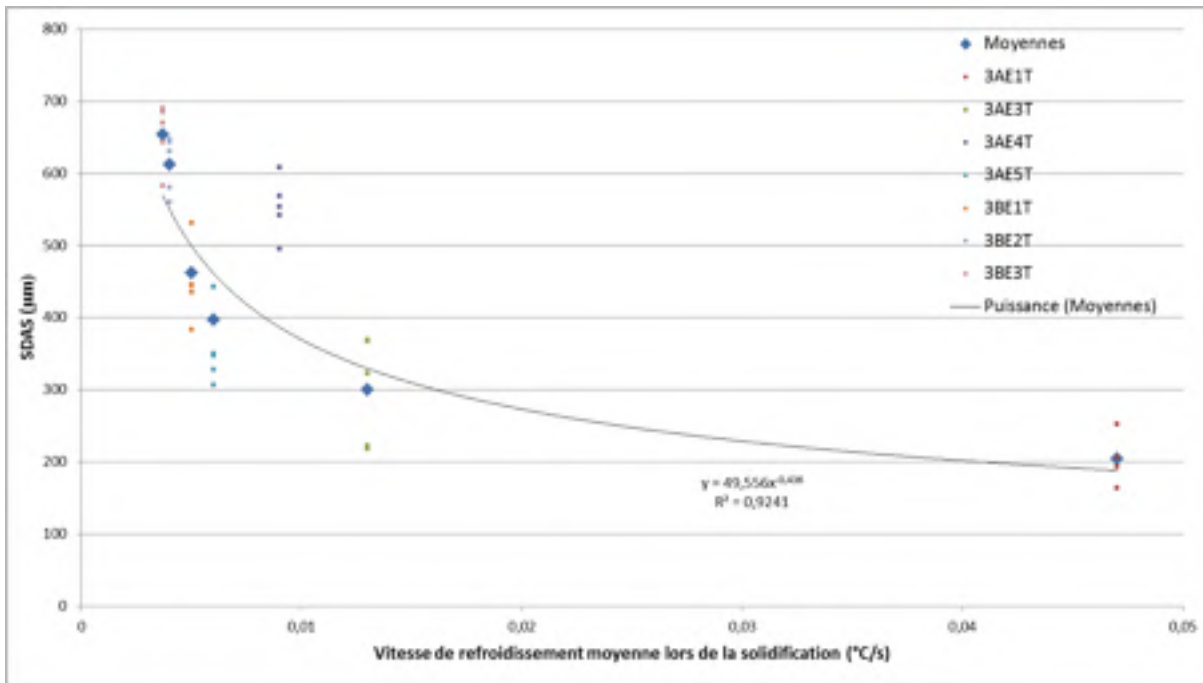


Figure 3.17 SDAS en fonction de la vitesse de refroidissement moyenne lors de la solidification dans le lingot de 40 t

Selon les auteurs s'intéressant à l'évolution de l'espace interdendritique secondaire en fonction de la vitesse de refroidissement dans des géométries se solidifiant unidirectionnellement, les lois des SDAS suivies sont des lois puissances. (Jacobi & Wünnenberg, 1999; Senk, Engl, Siemon, & Stebner, 1999; Weisgerber et al., 1999; Won & Thomas, 2001) Une tendance de loi puissance se dessine clairement au sein des mesures faites sur nos échantillons (Figure 3.17). Avec, un intervalle de tolérance entre 100 μm et 150 μm correspondant à l'erreur de Won lorsqu'il utilise une régression afin d'établir sa loi (partie 1.5.1.1) (Won & Thomas, 2001). Ainsi, l'ordre de grandeur et la tendance trouvée sont concluants car Rutskii et al., 2017 trouve des SDAS allant de 200 μm à 400 μm sur une distance de 300 mm, respectivement de la surface vers le centre.

Ainsi la régression en puissance permet de définir la fonction SDAS sur l'intervalle de définition  $[0.005 ; 0.05]$  telle que :

$$\text{SDAS} = 49,6. C_r^{-0,436} \quad (3.2)$$

La littérature traite souvent des croissances des dendrites à des vitesses plus élevées. (Jacobi & Wünnenberg, 1999; Pierer & Bernhard, 2008; Senk et al., 1999) Le fait d'avoir de gros volumes dans le cas présent permet d'avoir des vitesses de refroidissement suffisamment faibles (entre  $0.005 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$  et  $0.05 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$ ). Il faut rappeler que la loi de Won est établie sur le domaine de définition  $C_r \in [0.1 ; 5]$ . Ce qui est élevé par rapport à l'ordre de grandeur des vitesses rencontrées. L'estimation par l'équation de Won est tracée sur la Figure 3.18. Les prédictions sur les SDAS sont excessives par rapport à ce qui est mesuré, soit respectivement  $800 \text{ }\mu\text{m}$  et  $300 \text{ }\mu\text{m}$  pour  $0.015 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$  par exemple. (Figure 3.18) De plus, l'équation 3.2 intègre des échantillons ayant une composition en carbone plus grande que la composition nominale comme l'échantillon 3BE3T ( $0.46 \text{ m.\% C}$ ), cependant ces écarts de concentrations induisent des écarts de SDAS d'environ  $50 \text{ }\mu\text{m}$  d'après la loi de Won (Figure 3.18) ce qui rentre dans l'intervalle d'erreur des mesures qui est d'environ  $100 \text{ }\mu\text{m}$  (Figure 3.18). De plus, Rutskii et al., 2017 ne considèrent pas la macroségrégation malgré leur mention de son influence.

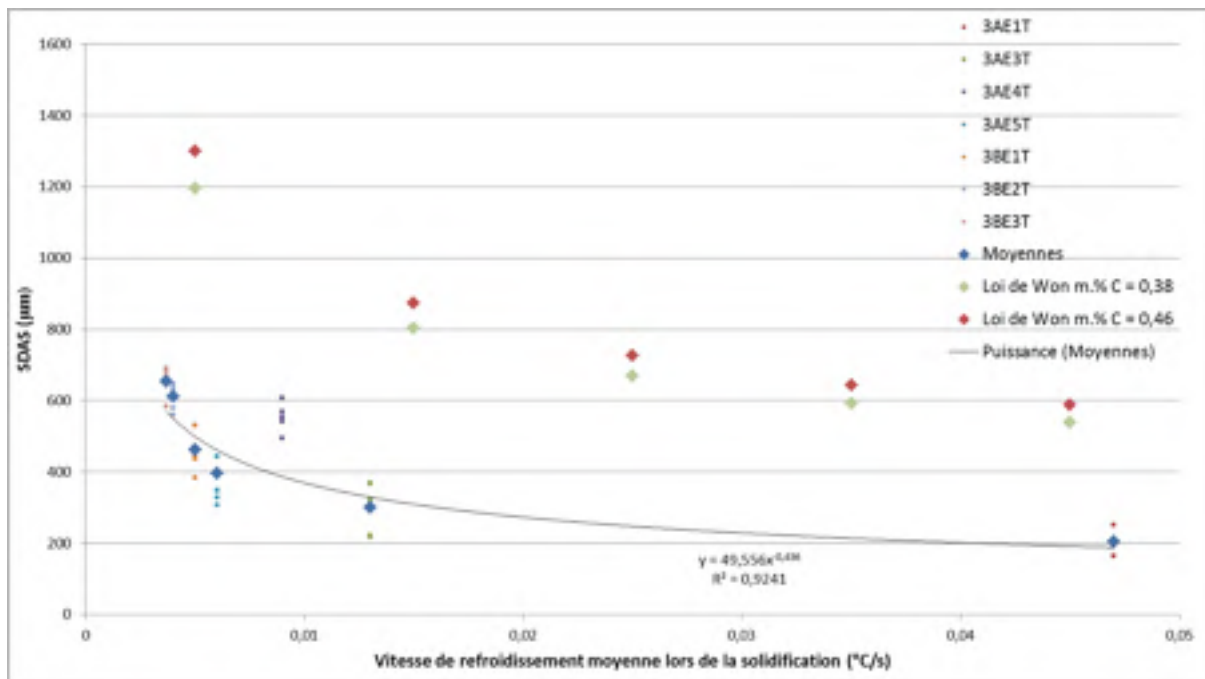


Figure 3.18 Comparaison entre la loi tracé et la loi de Won pour deux compositions chimiques (m.% C = 0.38 et 0.46)

### 3.5 Analyse thermique

Dans cette partie, les résultats présentés seront les résultats obtenus après l'analyse thermique réalisée par « Differential Scanning Calorimetry » (DSC) au centre de recherche de Hydro Québec (IREQ). Ces résultats ont permis à la fois de discuter sur la validité des paramètres tels que le liquidus, le solidus, la capacité thermique massique implantés dans le logiciel Thercast®. Puis bien sûr de rendre compte de l'influence de la vitesse de refroidissement sur ces derniers paramètres dans le cas de l'acier de Finkl Steel (Sorel). Une première sous-partie sera consacrée à la calibration de l'appareil. Ensuite viendront l'étude des paramètres thermophysiques pour la composition nominale de l'acier de l'industriel et à la composition macroségrégée qui a été relevé dans la masselotte afin de se rendre compte de l'impact de la macroségrégation sur ces paramètres.



### 3.5.1 Calibration

La calibration de l'appareil est nécessaire afin d'effectuer une correction des erreurs relatives de l'appareil par rapport aux températures de fusion et aux enthalpies de fusion définies par la norme ASTM. Trois éléments purs ont été choisis afin d'effectuer cette calibration, l'argent (Ag), l'or (Au) et le nickel (Ni). Ces éléments ont des températures de fusion assez éloignées les unes des autres. Cela permet de couvrir l'intervalle de température de cette étude (50°C-1550°C). Les valeurs sont mesurées au chauffage car lors de la montée en température, l'influence de la vitesse de chauffe est moindre sur les températures de transition. (Bleckmann et al., 2015) Il sera présenté ici, le cycle de chauffage pour l'argent qui est un élément de calibration (Figure 3.19), les courbes associées à l'or et le nickel sont en annexe (annexe IV).

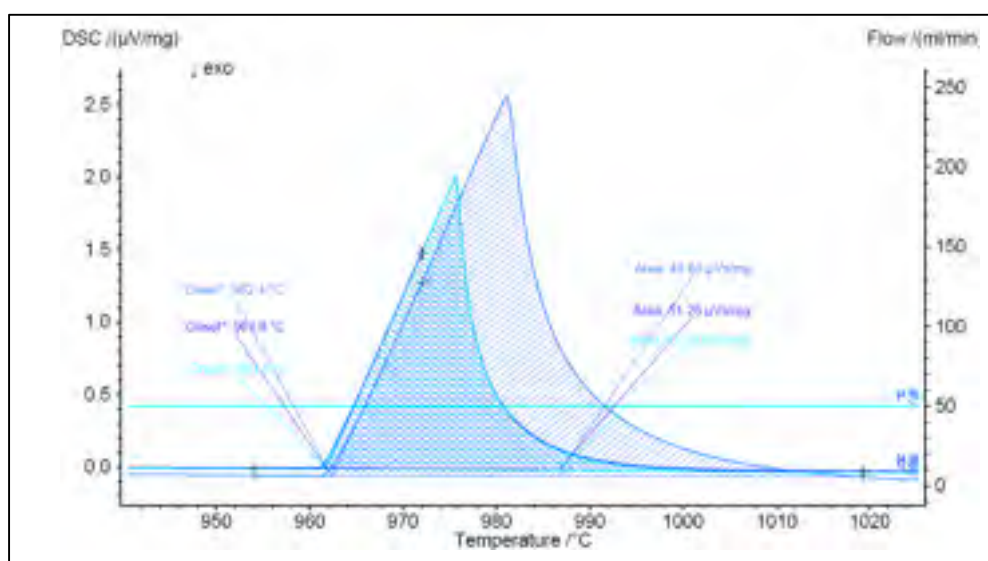


Figure 3.19 Courbe de calibration pour l'élément argent

Le cycle de calibration est donc effectué trois fois à différentes vitesses de chauffage dans un environnement neutre (Argon à 50 ml/min). Il est possible d'observer sur la Figure 3.19, l'influence de la vitesse de chauffe qui a un effet sur l'aire de la courbe Flux de chaleur-Température. En effet, la courbe avec une aire de 48.86  $\mu\text{Vs/mg}$  a été réalisée à une vitesse de chauffage deux fois plus grande que les deux autres, 50 K/min contre 25 K/min. A partir des valeurs mesurées ainsi (Tableau 3.2), il est possible d'établir un polynôme correcteur.

Tableau 3.2 Calibration en température

<b>Elément</b>	<b>Temp. Nom. (°C)</b>	<b>Temp. Exp. (°C)</b>	<b>Pondération</b>	<b>Temp. Corr. (°C)</b>
Ag	961.8	962.0	1	963.8
Au	1064.2	1064.4	1	1068.5
Ni	1455.0	1439.7	1	1452.0

Pour la calibration en énergie (Tableau 3.3), la même chose est réalisée mais la machine corrige en sensibilité. Celle-ci est calculée à partir du rapport entre la valeur de l'air du pic et l'enthalpie standardisée dans la norme ASTM.

Tableau 3.3 Calibration en énergie

<b>Elément</b>	<b>Temp. Nom. (°C)</b>	<b>Enthalpie (J/g)</b>	<b>Aire du pic (μV.s/mg)</b>	<b>Sens. Exp. (μV/mW)</b>	<b>Pondération</b>	<b>Sen. Calc. μV/mW</b>
Ag	961.8	-104.6	-51.3	0.490	1	0.487
Au	1064.2	-63.7	-28.9	0.454	1	0.441
Ni	1455.0	-290.4	-60.5	0.208	1	0.225

Lors de cette calibration, deux remarques peuvent être faites. Le nickel fusionne à une température mesurée différente de 15.3°C par rapport à la température de fusion standardisée. L'argent et l'or ont seulement un écart de 0.2°C. De plus, la sensibilité de l'appareil à l'énergie dégagée à haute température (avec le nickel) chute drastiquement, celle-ci est divisée par deux. Avec ces deux observations, la discussion devra prendre compte des incertitudes qui augmentent à des températures plus élevées.

### 3.5.2 Composition nominale

L'objectif de cette partie est de traiter les différentes mesures obtenues pour l'échantillon avec une composition proche du nominal de l'acier de Finkl Steel (Sorel). Tout d'abord, la répétabilité des essais sera discutée car celle-ci interviendra par la suite lors de la discussion des résultats obtenus. Puis, les paramètres à l'équilibre sont déterminés tels que les températures de transition ( $T_{liq}$  et  $T_{sol}$ ), la capacité calorifique massique ( $c_p$ ) et l'enthalpie de fusion ( $L$ ). Ensuite, la répétabilité des essais sera discutée. Enfin, une loi de comportement des températures de transition sera développée en fonction de la vitesse de refroidissement.

#### 3.5.2.1 Répétabilité

Les essais de répétabilité ont été réalisés au chauffage et au refroidissement sur le cycle thermique ayant comme vitesse de refroidissement 50 K/min. (partie 2.3.3.2) Au chauffage, il est possible de constater que la répétabilité est correcte pour les températures de transition (écart de 2°C pour  $T_{sol}$ , écart de 3°C pour  $T_{liq}$ ) (Figure 3.20). Cependant, une variation apparaît à haute température sur le flux de chaleur mesuré, ayant à 1550°C, un écart de -1 W/g entre l'essai 1 et l'essai 3 (Figure 3.20). Bien que la ligne de base utilisée soit la même car la cinétique du cycle thermique est la même dans tous les essais (Figure 3.20). L'erreur pourrait provenir de plusieurs sources comme la masse (44.7 mg et 42.1 mg entre respectivement l'essai 1 et l'essai 2), de la différence de géométrie de l'échantillon posé dans le creuset ou alors même de la position de l'échantillon dans le creuset (Boettinger et al., 2006). En effet, lors des essais 2 et 3, les échantillons ont été retrouvés dans le coin du creuset alors que lors de l'essai 1, l'échantillon était toujours positionné au centre.

Les essais de répétabilité au refroidissement montrent évidemment toujours l'écart sur le flux de chaleur qui a commencé à haute température lors du chauffage mais surtout un large écart entre les températures de transition, soit 42°C pour  $T_s$  et 21°C pour  $T_l$  (Figure 3.21). En effet, ces derniers sont assez délicats car comme le note Bleckmann (Bleckmann et al., 2015) dans son article, les échantillons après un cycle ont perdu leur composition initiale car certains éléments chimiques (ex : carbone) peuvent s'évaporer comme il le note avec ses mesures

réalisées à partir des gaz qui émanent de l'échantillon. Ainsi, un acier contenant 1 m.% C et connaissant des vitesses de refroidissement de 20 et 40 K/min, a une composition finale respective de 0.48 m.% C et 0.8 m.% C (Bleckmann et al., 2015). Cela, dans une atmosphère d'argon avec un flux de 50 ml/min.

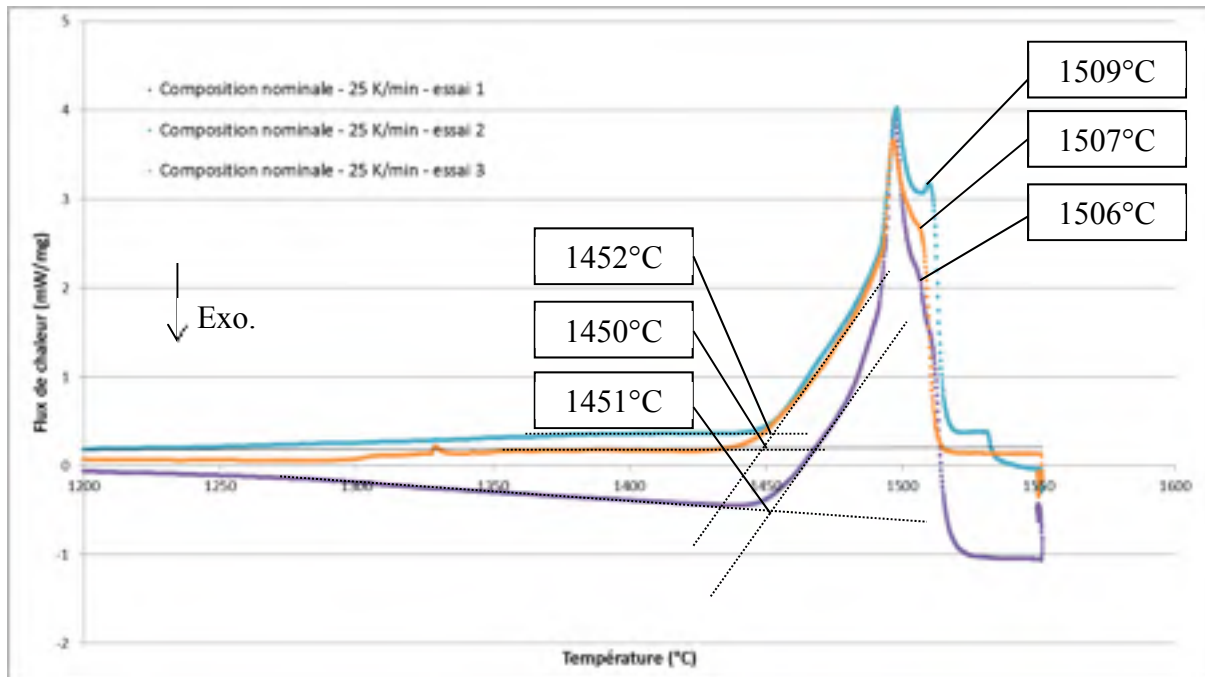


Figure 3.20 Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage

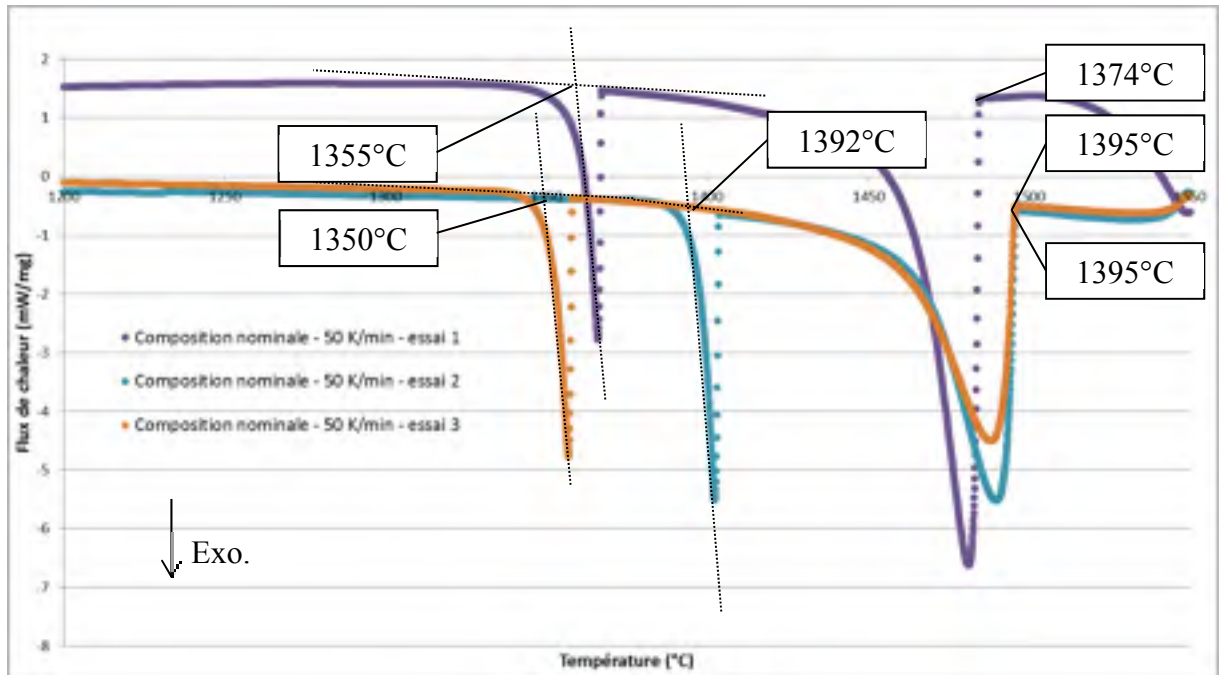


Figure 3.21 Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement

### 3.5.2.2 Liquidus et Solidus

Pour mesurer les températures de transition ( $T_{liq}$  et  $T_{sol}$ ) à l'équilibre, la première méthode serait de faire une mesure au refroidissement à vitesse très faible mais comme il a été mentionné précédemment il est difficile d'obtenir des pics de transition de phase assez nets pour faire des mesures (Bleckmann et al., 2015). Cependant la mesure des températures de transition peut se faire au chauffage car la vitesse de chauffe n'influence que de très peu la mesure des températures de transition à l'équilibre (maximum de 5°C d'écart) (Bleckmann et al., 2015). JMatPro® prévoit un  $T_{liq}$  et un  $T_{sol}$  à 1490°C et 1428°C (partie 3.3.1). Cependant, un écart respectif de 21°C et 25°C existe entre le numérique et l'expérimental (Figure 3.22). Cet écart est à peu près deux fois plus grand que ce qu'obtient Bleckmann dans l'analyse de ces températures de transition à l'équilibre (Bleckmann et al., 2015). Cet écart pourrait provenir du changement de composition qui commence dès le cycle de chauffage car les températures de transition mesurées sont toujours au-dessus de ce qui est prévu par JMatPro® ce qui correspond à une perte de carbone dans l'acier. Sinon, l'erreur pourrait provenir tout simplement du logiciel à équilibre thermodynamique. De plus, comme le prévoit JMatPro®,

deux pics se distinguent lors du chauffage, ces deux derniers correspondent aux deux phases en présence  $L+\gamma$  (liquide et austénite) tout d'abord et  $L+\delta$  (liquide et ferrite) ensuite (Boettinger et al., 2006)(Figure 3.22).

Au refroidissement, l'échantillon 3DC3T connaît la transition  $L \rightarrow L+\delta$  et une transition  $L+\delta \rightarrow L+\gamma$  mais l'intervalle de solidification est étendu ce qui fait apparaître ces deux pics avec un décalage par rapport au chauffage (Figure 3.23). D'ailleurs, Bleckmann ajoute que plus la vitesse de refroidissement est grande, plus il sera difficile de faire la distinction entre les différentes transformations (Bleckmann et al., 2015). Une tendance est clairement visible pour les températures de transition à différentes vitesses de refroidissement mais celle-ci sera discutée à la partie 3.5.2.5.

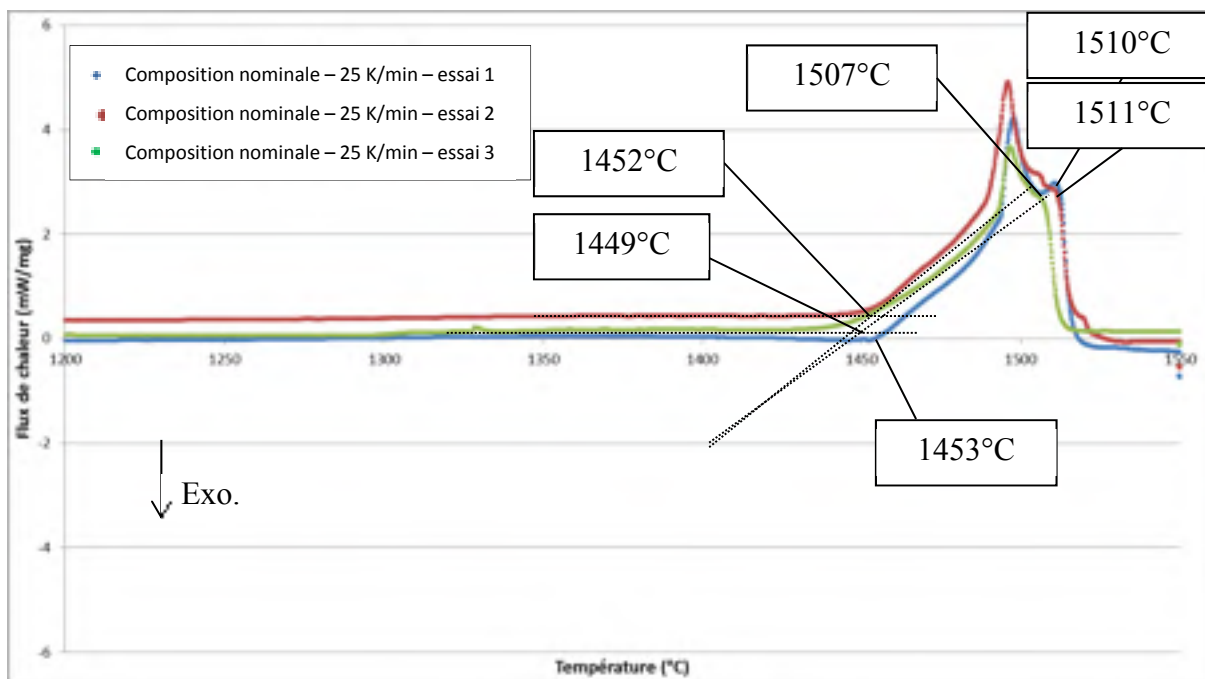


Figure 3.22 Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage

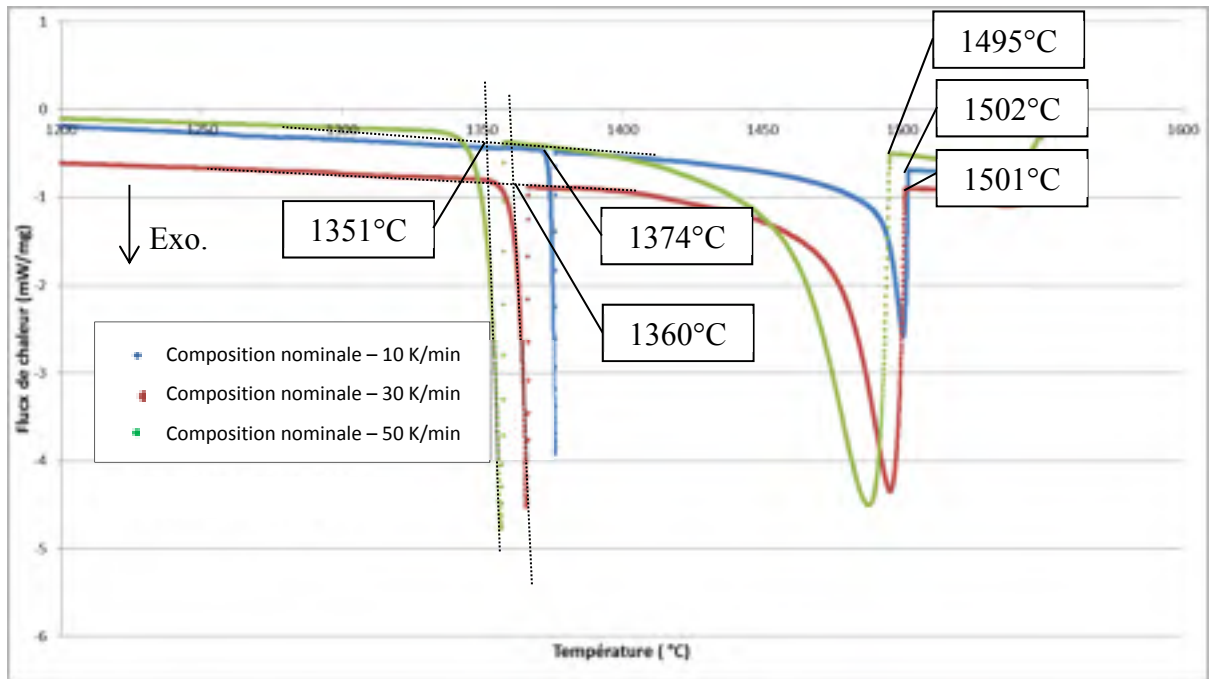


Figure 3.23 Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement

### 3.5.2.3 Capacité calorifique massique

La mesure de la capacité calorifique massique ( $c_p$ ) a été réalisée grâce à un échantillon de saphir comme étalon. Celui-ci est choisi ayant une masse à peu près équivalente (à 5 mg près) de l'échantillon. La tendance est similaire mais avec un écart en amplitude (environ 1 J/(g.K)) existe entre les différentes vitesses de refroidissement (10 K/min, 30 K/min et 50 K/min) (Figure 3.24).

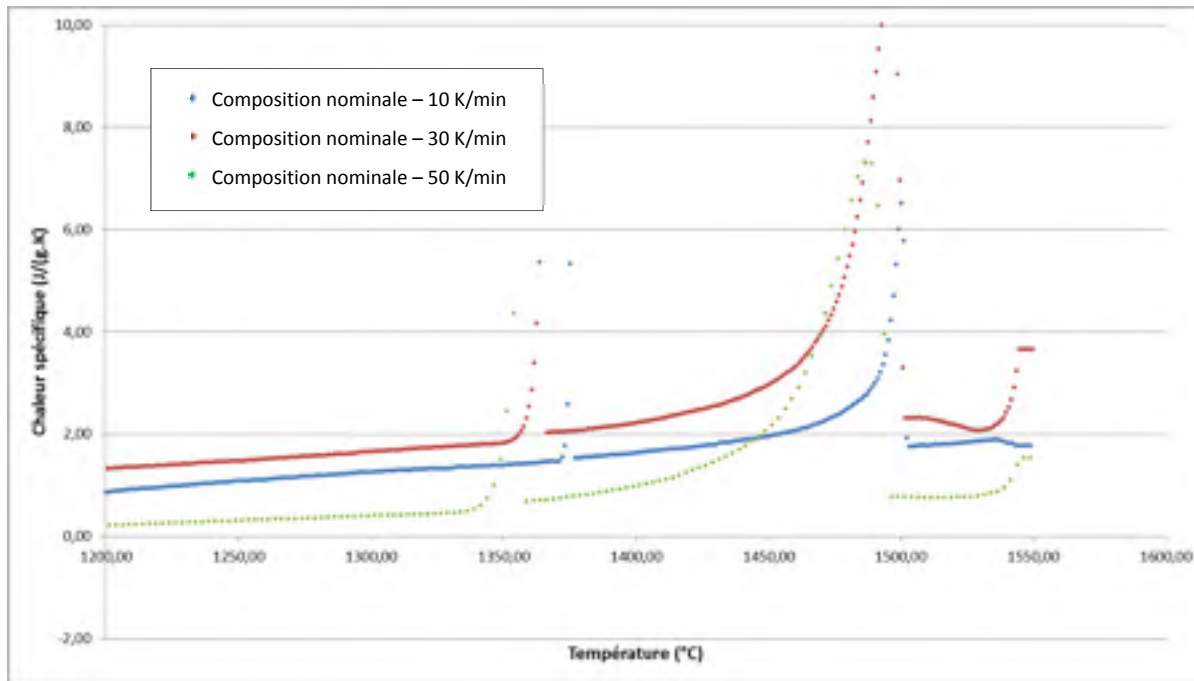


Figure 3.24 Capacité thermique massique lors du refroidissement

### 3.5.2.4 Enthalpie

L'enthalpie de transformation liquide-solide (ou chaleur latente de transformation) a été mesurée sur les courbes de chauffage en intégrant la courbe de la capacité thermique massique en fonction de la température à partir d'un programme Matlab®. L'enthalpie moyenne mesurée est proche de l'enthalpie calculée par JMatPro® (environ 12 kJ/kg), cependant celle-ci a une erreur relative associée aux mesures qui peuvent atteindre jusqu'à 26%. Ainsi, grâce à cette mesure, il est totalement satisfaisant de garder la chaleur latente du fichier 25CrMo4 qui ne change que de 10 kJ/kg (partie 3.3.1).



Tableau 3.4 Détermination de l'enthalpie

	Enthalpie (kJ/kg)	Erreur relative
<b>Essai 1</b>	266	0%
<b>Essai 2</b>	317	19%
<b>Essai 3</b>	231	13%
<b>Essai 4</b>	198	26%
<b>Essai 5</b>	305	14%
<b>Essai 6</b>	284	6%
<b>Enthalpie Moyenne</b>	<b>267</b>	
<b>Enthalpie JMatPro</b>	<b>255</b>	

### 3.5.2.5 Effet de la vitesse de refroidissement sur le liquidus, solidus et intervalle de solidification

Les comportements expérimentaux des températures de transition sont tracés en fonction de la vitesse de refroidissement, ainsi que les mesures au chauffage pour les températures à l'équilibre. Puis, celles-ci sont comparées aux températures de transition calculées à l'équilibre avec JMatPro® et Factsage®. Comme il a été mentionné, un écart d'environ 20°C existe entre les deux (partie 3.5.2.2) (Figure 3.25). Les comportements sont clairement différents entre le liquidus et le solidus. Pour le liquidus, celui-ci se comporte de façon linéaire mais comme le mentionne Bleckmann (Bleckmann et al., 2015), celui-ci varie beaucoup moins que le solidus en fonction de la vitesse de refroidissement. Ce dernier n'a pas de comportement linéaire mais l'erreur est plus grande, avec une répétabilité moindre. Cependant, le comportement linéaire n'est pas forcément obligatoire comme le montre Gryc et al., 2013 (Figure 3.25).

Ces résultats montrent un point important pour l'étude présente. La faible variation du liquidus à vitesse de refroidissement entre 10 et 50 K/min peut remettre en question le fait d'adapter cette température de transition dans les simulations numériques avec des lingots qui se solidifient avec un ordre de grandeur de 1 K/min. De plus, l'erreur qui existe dans les logiciels de thermodynamique par rapport à ce qui est mesuré au chauffage est plus grande que la variation de cette température sur la plage de vitesses de refroidissement sélectionnées. Donc ces essais n'amélioreront pas grandement la prédiction de la solidification dans les lingots de

grande taille, ces variations de températures sont intéressantes pour des procédés à hautes vitesses de refroidissement comme le soudage.

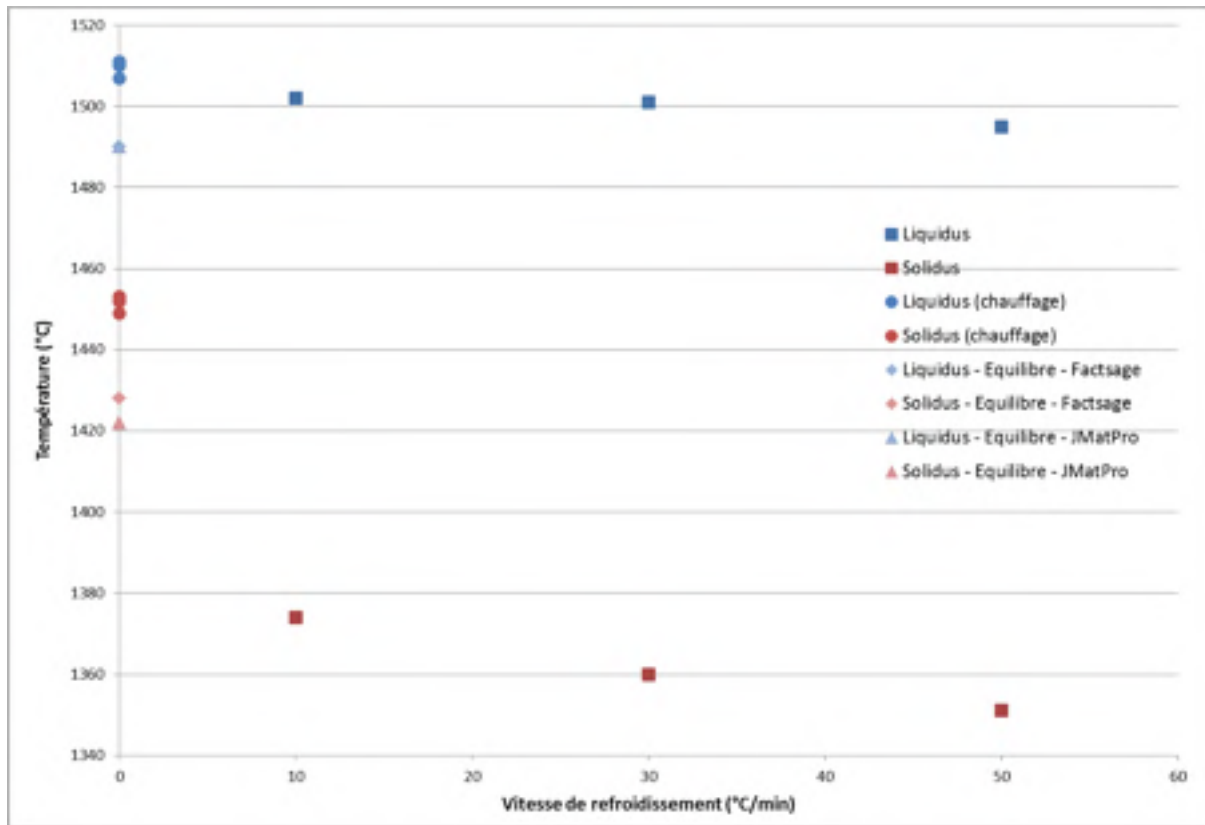


Figure 3.25 Évolution des températures de transition avec la vitesse de refroidissement

### 3.5.3 Composition macroségrégée

L'analyse sur la composition macroségrégée sera plus succincte car elle se concentre uniquement sur la détermination des températures de transition à l'équilibre (au chauffage) et à l'influence de la vitesse de refroidissement. L'intérêt de faire une analyse sur la macroségrégation ségrégée est de faire ressortir les tendances qui existent pour les propriétés liquidus, solidus dans la partie haute du lingot (regroupant la masselotte et les 30 cm du haut).

Il est intéressant de constater qu'au chauffage les deux pics de transformation n'existent plus. En effet, comme cette composition est chargée avec 0.69 m.% (partie 2.3.2.2), l'échantillon ne forme pas de ferrite  $\delta$  (Figure 3.26). De plus, lors du refroidissement deux pics sont discernables pour les essais à 10 K/min et 50 K/min. Ces pics sont un indice sur le fait que la composition change et que la première phase formée lors du refroidissement est la phase ferrite  $\delta$ . Cela est dû au fait que l'échantillon a perdu du carbone et a passé le point péritectique à 0.53 m.% C (Bleckmann et al., 2015). Cependant d'après Bleckmann et al. (Bleckmann et al., 2015), comme la composition doit être proche du point péritectique, il est possible la transition en ferrite  $\delta$  ne soit pas visible. (Bleckmann et al., 2015) C'est le cas pour l'essai avec 30 K/min de vitesse de refroidissement (Figure 3.27).

Finalement le comportement par rapport à la vitesse de refroidissement est le même que pour la composition nominale :  $T_{liq}$  et  $T_{sol}$  diminuent avec la vitesse de refroidissement. Le liquidus semble suivre une loi linéaire alors que le solidus n'a pas de tendance particulière (Figure 3.28). Il est également notable que la température  $T_{liq}$  estimée par JMatPro® a 2°C de différence avec la mesure lors du chauffage (Figure 3.28).

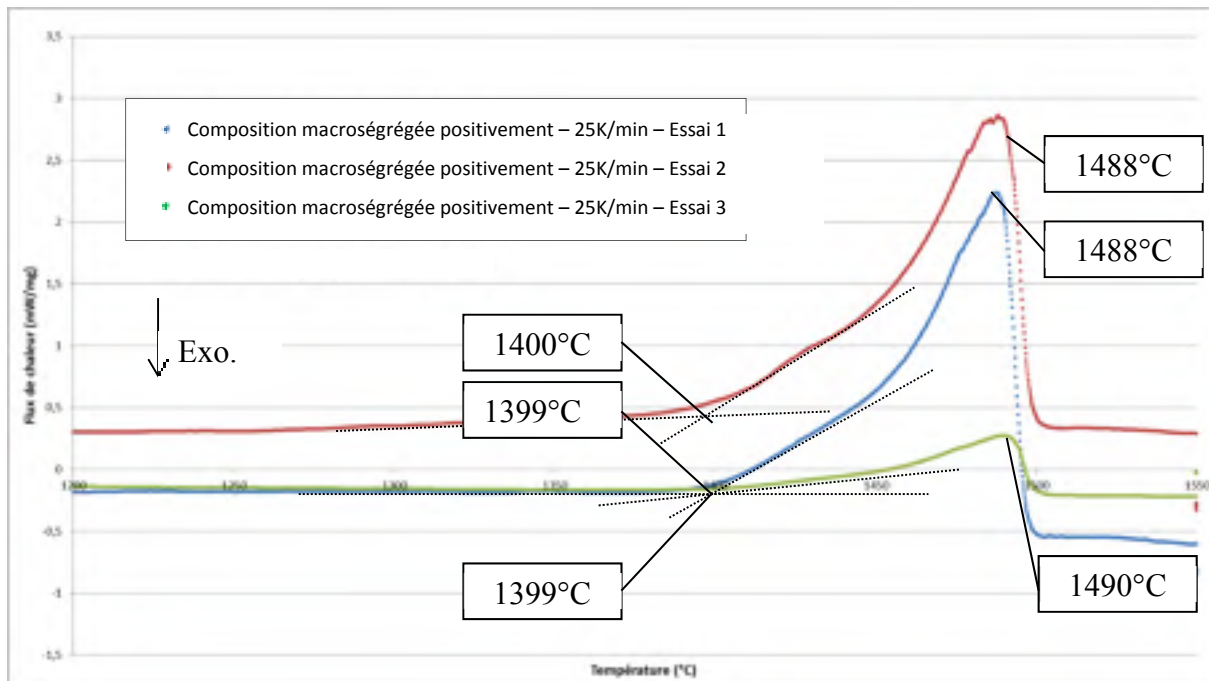


Figure 3.26 Flux de chaleur en fonction de la température lors du chauffage

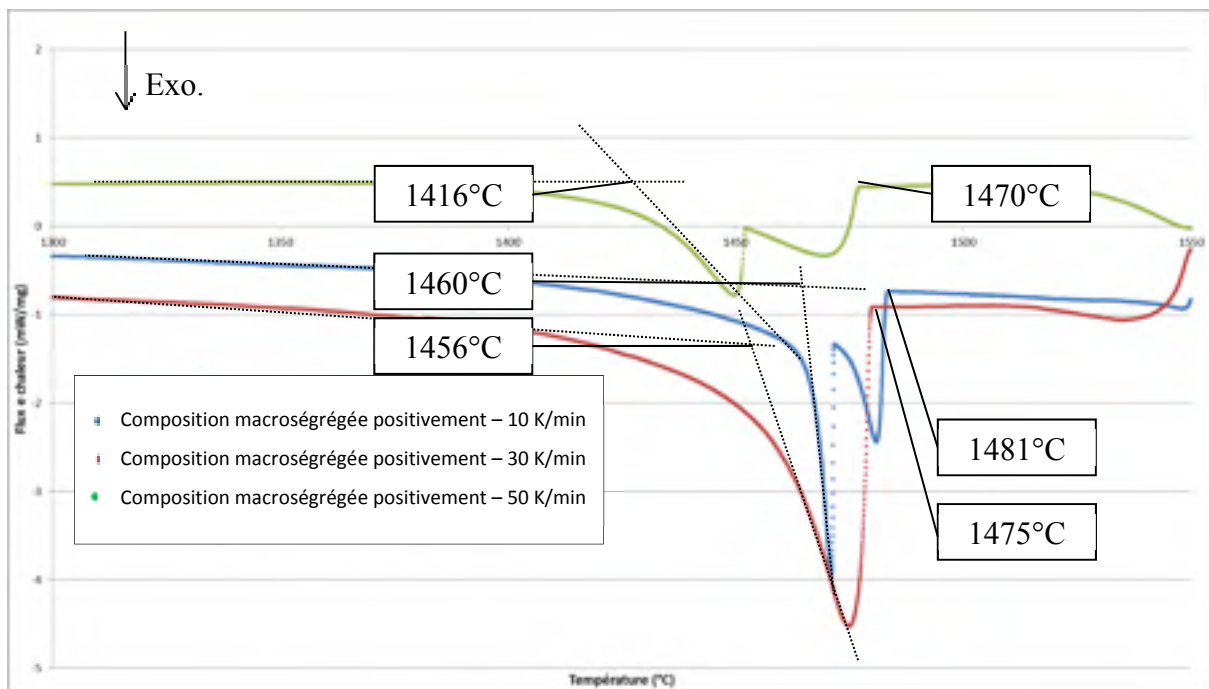


Figure 3.27 Flux de chaleur en fonction de la température lors du refroidissement

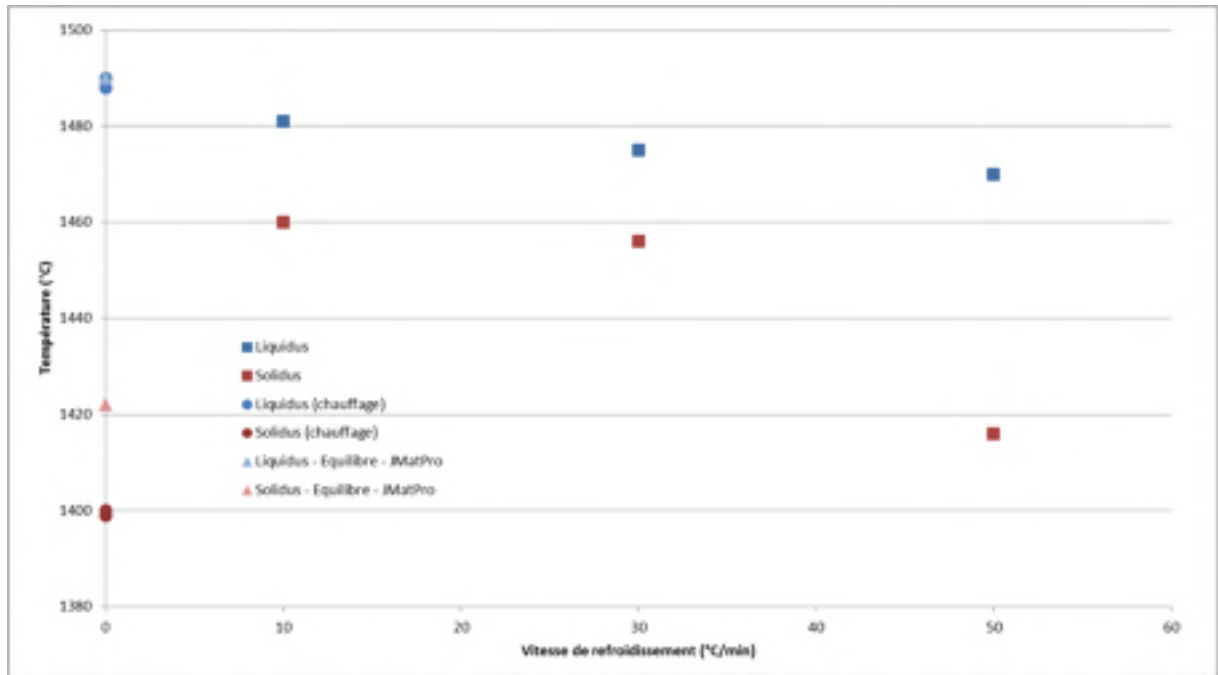


Figure 3.28 Évolution des températures de transition avec la vitesse de refroidissement

### 3.6 Influence des paramètres adaptatifs sur la macroségrégation

Cette partie regroupera les essais qui ont été réalisés à partir du modèle de solidification unidirectionnelle et le modèle de 40 t.

#### 3.6.1 Modèle de solidification unidirectionnelle

Le modèle de solidification unidirectionnelle est le modèle qui a permis de discuter de plusieurs aspects car par rapport à sa petite géométrie et sa taille de maille (partie 2.4.2), celui-ci permettait d'avoir une configuration proche de ce qui est réalisé dans la littérature (Gouttebroze et al., 2005; Wu et al., 2016). Ainsi, il fut utilisé pour reproduire quelques vitesses de refroidissement rencontrées dans un lingot de grande taille, notamment les vitesses rencontrées dans la zone proche de la surface. Ensuite, une discussion a été apportée sur les deux algorithmes de macroségrégation utilisés par Thercast. Avec enfin, une comparaison entre les résultats obtenus avec des SDAS constants et des SDAS adaptatifs. Le modèle avec les températures de transition ( $T_{liq}$  et  $T_{sol}$ ) adaptatives n'a pas été réalisé car comme il a été

noté précédemment, leurs variations ne sont pas assez importantes pour les vitesses de refroidissements étudiées.

### 3.6.1.1 Influence de la vitesse de refroidissement sur les SDAS et la macroségrégation

Deux cas ont été considérés afin de reproduire quelques ordres de grandeur des vitesses de refroidissement rencontrées dans le lingot de 40 t proche de la surface (Figure 3.29). Il aurait été certainement intéressant de réaliser des essais pour des vitesses de refroidissement plus faibles comme celles rencontrées dans le reste du lingot mais la loi de Won utilisée ne couvre pas de si faibles vitesses dans son domaine de définition. Pour se faire deux températures ont été utilisées pour la surface froide ont été choisies ( $T_s$ ) : 1000 °C et 1200 °C, afin d'obtenir deux régimes de vitesses de refroidissement. Ces essais ont été réalisés avec l'algorithme thermomécanique.

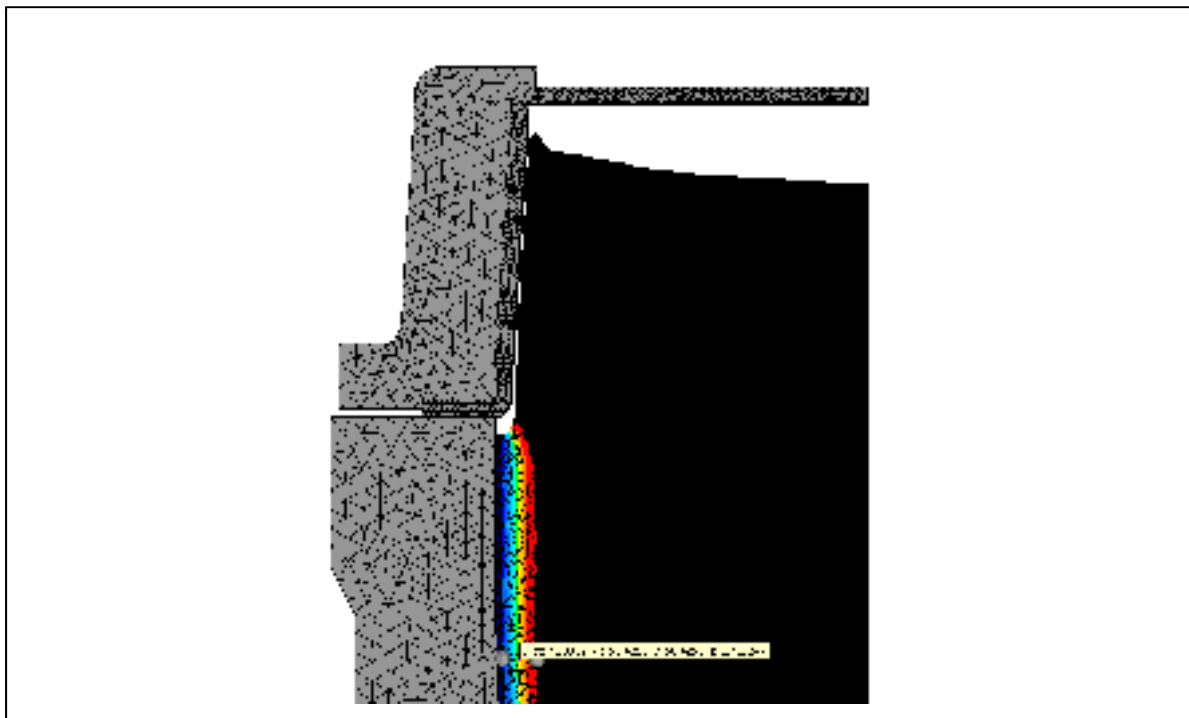


Figure 3.29 Zone du lingot de 40 t avec les vitesses respectant la loi de Won

Bien que la loi de Won ne permette pas de réaliser les essais sur des vitesses de refroidissement plus faibles, celle-ci prévoit une variation de SDAS assez significatives sur 10 cm allant de 40  $\mu\text{m}$  à 450  $\mu\text{m}$ . La configuration choisie (conditions aux limites, géométrie) avec l'algorithme prédit 3 zones distinctes : la zone 1 qui est la zone en amont du front de solidification, la zone 2 qui est une zone de macroségrégation négative sous le front de solidification et la zone 3 qui est une zone de macroségrégation positive. En effet la zone rouge n'est pas une zone de macroségrégation à 0% comme l'échelle peut le laisser penser. La zone rouge désigne les zones de macroségrégation positive ( $> 0\%$ ) comme il est montré sur la Figure 3.30. De plus, il est possible de constater des amas de ségrégation négative aux abords de la surface froide.

La zone totale de macroségrégation positive en additionnant l'aire de la zone 1 et de la zone 3 est 85% plus petite pour des vitesses de refroidissement plus grandes ( $T_s = 1000^\circ\text{C}$ ) favorisant l'expansion des zones de macroségrégation négative. Par l'exemple, la zone avec un taux de macroségrégation inférieur à  $-0.016\%$  sera 72% plus petite pour  $T_s = 1200^\circ\text{C}$ . A de faibles vitesses de refroidissement correspondant à des formations de SDAS plus larges, les aires contenant la macroségrégation positive augmentent. De plus, des vitesses de refroidissement plus faibles élargissent la zone de transition liquide-solide qui est constituée de macroségrégation positive.

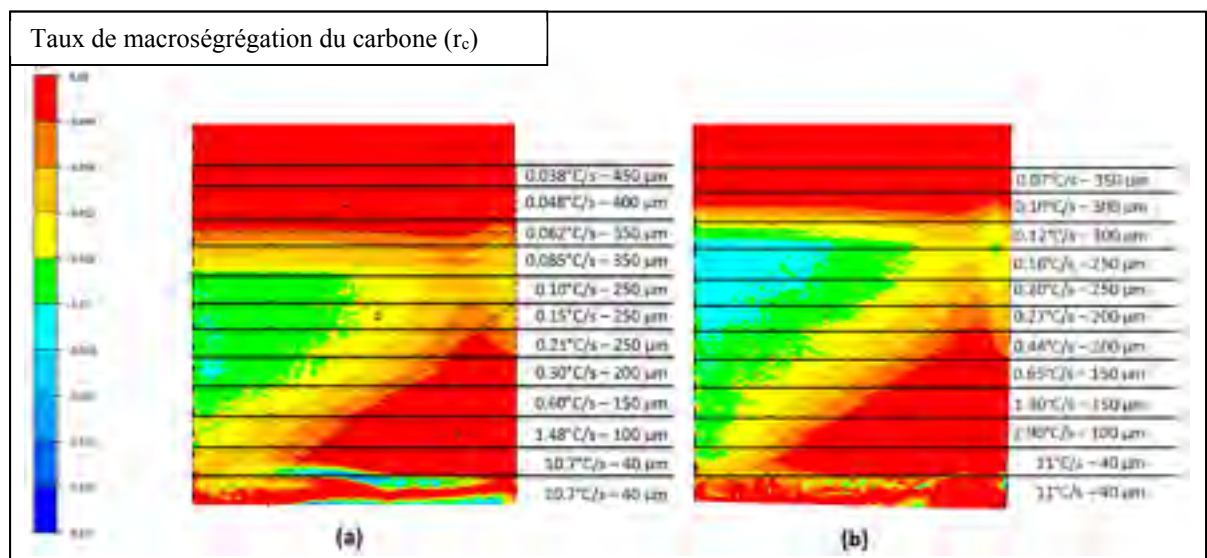


Figure 3.30 Taux de macroségrégation négative du carbone dans après la solidification d'un alliage 25CrMo4, (a)  $T_s = 1200^\circ\text{C}$  et (b)  $T_s = 1000^\circ\text{C}$

Contrairement à ce qui est constaté dans des modèles comme Wu et al. (Wu et al., 2016), de la macroségrégation positive est située sous le front de solidification. Cette poche est notamment due au fait que l'algorithme Thercast simule la contraction solide lors du refroidissement ce qui n'est pas le cas dans l'article de Wu et al.. (Wu et al., 2016). Il est d'autant plus important de considérer cette zone que son amplitude est élevée par rapport à la macroségrégation due uniquement à la convection thermo-solutale. Le taux de macroségrégation positive dans cette zone 3 peut s'élever jusqu'à 21 % pour  $T_s = 1000$  °C et 11% pour  $T_s = 1200$  °C. Les vitesses du métal sont de  $5.10^{-6}$  m.s<sup>-1</sup> aux abords de la surface contre  $5.10^{-7}$  m.s<sup>-1</sup> au centre. Ces différences de vitesses sont la preuve que le mécanisme de formation de la macroségrégation est différent entre le bord et le centre avec respectivement des flux thermo-solutaux et la contraction solide proche des parois.

Wu et al. (Wu et al., 2016) expliquent le phénomène de convection thermo-solutale avec un cas similaire de solidification dirigée sur un alliage de Pb-Sn. Le flux thermique allant de zone chaude vers la zone froide est dirigé vers le bas du lingot alors que les flux solutaux sont dirigés vers le haut car le carbone a une masse plus faible que le fer. Ainsi, ces deux forces sont en opposition. Cependant le flux solutale va prévaloir sur le flux thermique ce qui va enrichir le front de solidification créant un appauvrissement sous ce dernier. Wu et al. abordent ce point mais avec un alliage de Pb-Sn sachant que l'étain est plus léger que le plomb (Wu et al., 2016).

### **3.6.1.2 Comparaison entre les deux algorithmes (thermomécanique et thermohydraulique)**

Deux algorithmes de résolution de macroségrégation, propres au logiciel Thercast®, ont été utilisés dans cette partie en utilisant le fichier 25CrMo4. Ces derniers sont développés en annexe (Annexe I). Il faut mentionner également que le maillage pour les résultats avec l'algorithme thermohydraulique a été raffiné (800 µm contre 1 mm avec l'algorithme thermomécanique).

Il est très difficile d'afficher les deux champs de macroségrégation de carbone avec des échelles pertinentes pour les deux algorithmes en même temps. En effet le champ de



macroségrégation positive sera hautement influencé par la contraction solide dans le cas thermomécanique (Figure 3.31). La conservation de masse des solutés va faire que le déséquilibre sera d'autant plus intense entre macroségrégation positive et négative dans ce dernier cas. Pour comparer quantitativement ce déséquilibre des lignes ont été tracées le long des 10 cm de solidification (Figure 3.32).

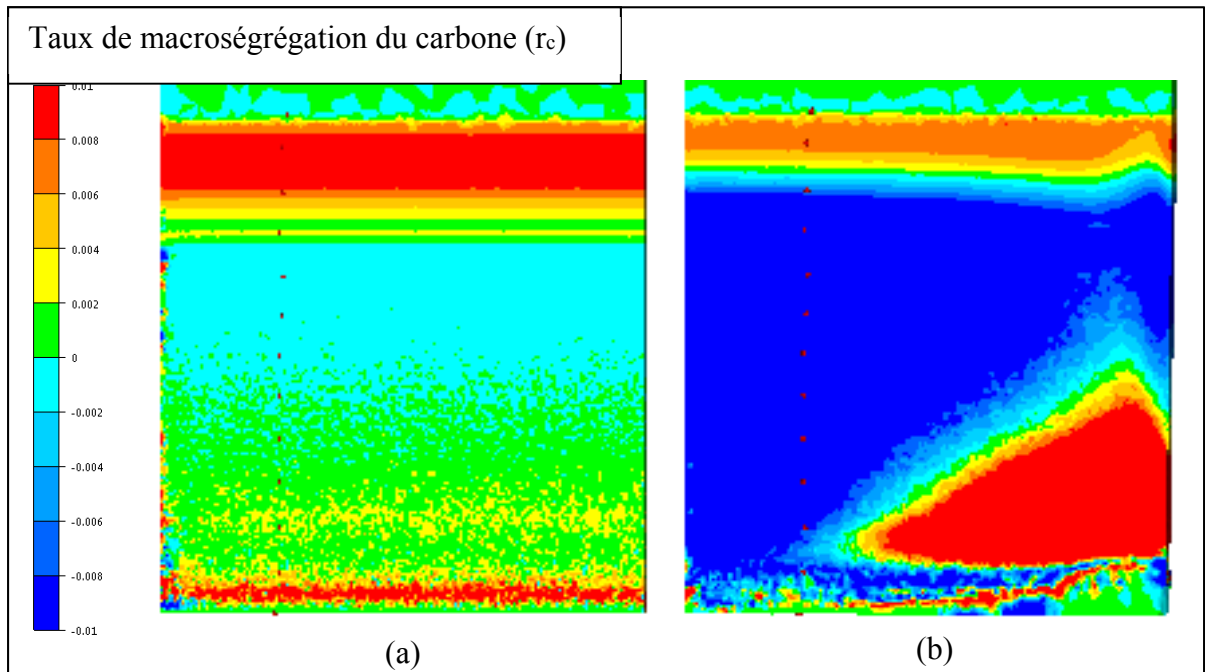


Figure 3.31 Résultats avec (a) l'algorithme thermomécanique et (b) thermohydraulique

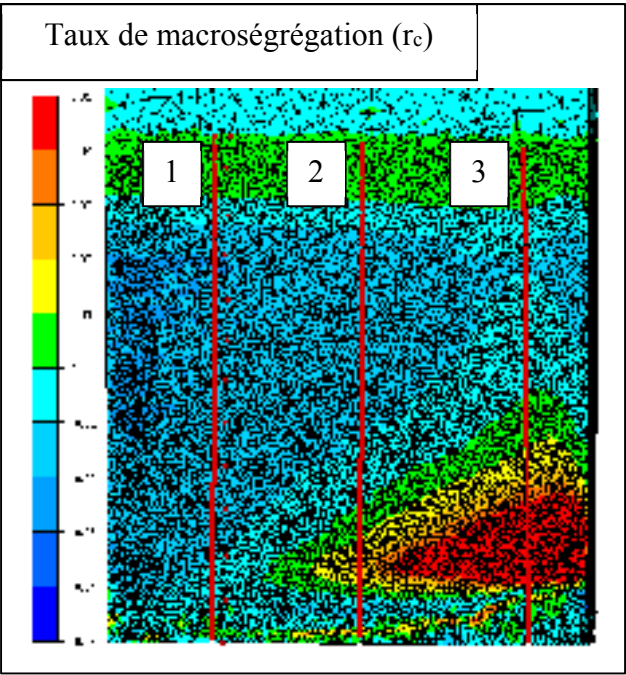


Figure 3.32 Lignes de mesure

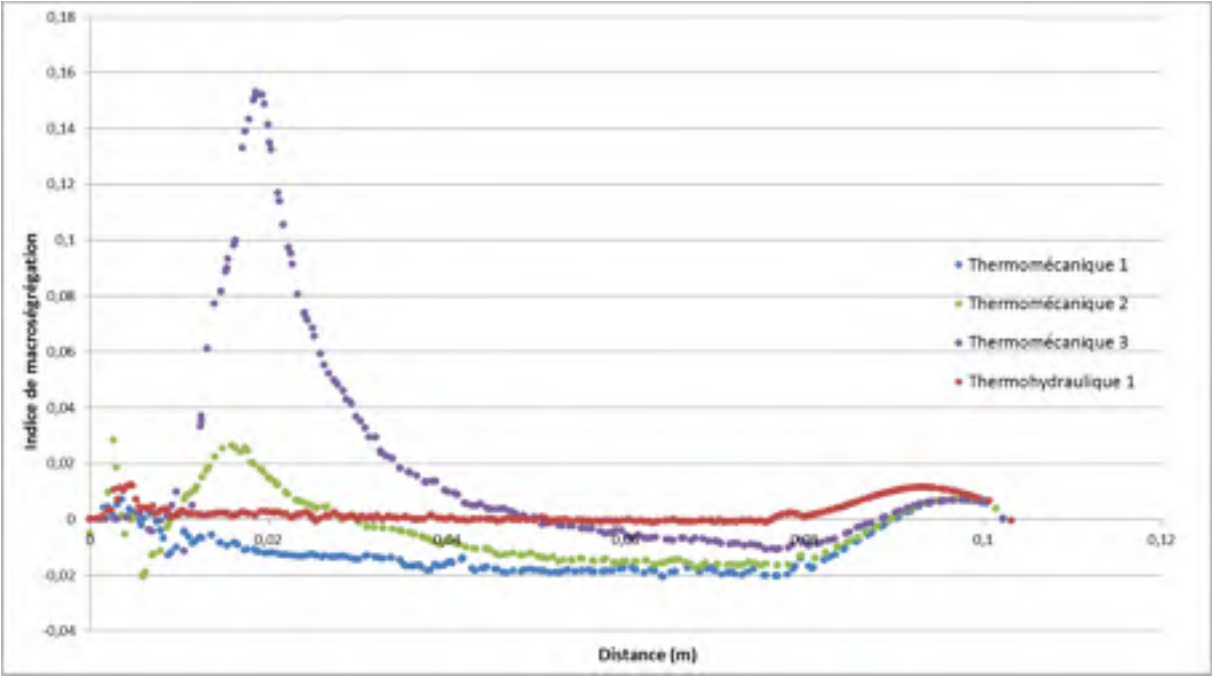


Figure 3.33 Taux de macroségrégation sur les lignes de mesure

Une seule ligne a été tracée sur la carte de macroségrégation pour l'algorithme thermohydraulique car il n'y a pas de variation sur le rayon du tube de solidification. La différence de répartition est flagrante entre les deux algorithmes, le premier prévoit (thermomécanique) une forte hétérogénéité au sein du lingot avec la contraction solide alors que le deuxième (thermohydraulique) ne prévoit presque pas de macroségrégation ou à taux très faible (environ 0.2%) sur le long du lingot (Figure 3.33).

Il est intéressant de voir que l'intervalle de solidification est de longueur équivalente (24 et 25 mm). Le modèle thermomécanique prévoit un intervalle de transition tantôt macroségré négativement (proche du solidus), tantôt macroségré positivement (proche du front de solidification). On peut voir cependant que l'ordre de grandeur des indices de macroségrégation dans les deux cas est le même (environ 1%). Puis il faut noter que le pic pour la 3<sup>ème</sup> ligne de mesure dans le cas thermomécanique n'est pas sur le point maximum de macroségrégation qui s'élève à 24%.

Grâce à ces trois lignes de mesures deux mêmes essais ont été lancés afin de vérifier la stabilité de l'algorithme thermomécanique. Les essais semblent assez répétables et confirme que le maillage choisi permet une répétabilité correcte. Ces essais ont été motivés par le fait que les simulations sur un lingot de 40 t avec des mailles plus larges (environ 2 cm) donnent des résultats différents à chaque simulation (Figure 3.34).

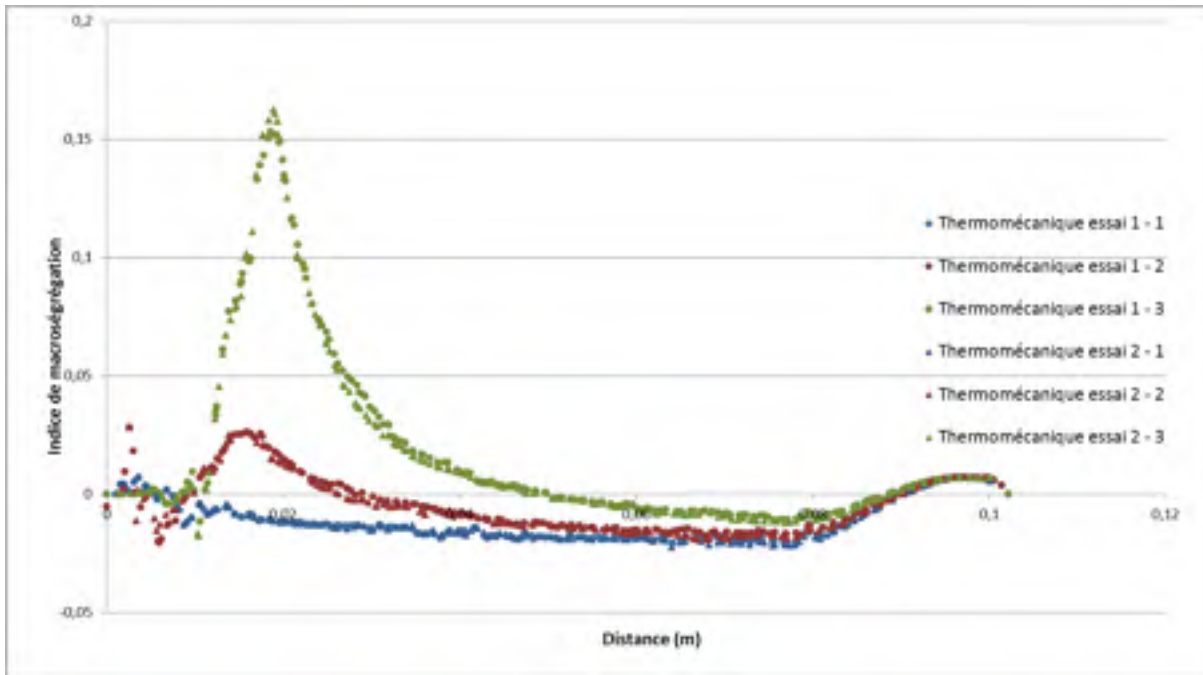


Figure 3.34 Stabilité de la résolution thermomécanique

### 3.6.1.3 Influence de l'espace interdendritique secondaire adaptatif sur la macroségrégation

Comme il a été vu précédemment, il est possible de prendre en compte de la perméabilité local de la zone de transition liquide-solide (Loi de Darcy) (partie 1.4.2.2) en utilisant le modèle thermohydraulique. Ainsi, l'essai a été fait sur le modèle avec une surface froide à la température de 1000°C. Afin d'apercevoir les variations qu'il pourrait y avoir sur une solidification prévoyant des espaces interdendritiques secondaires entre 40  $\mu\text{m}$  et 350  $\mu\text{m}$ . Bien qu'il soit possible de percevoir des variations d'amplitude du taux de macroségrégation dans la zone de transition liquide-solide, celles-ci peuvent être considérées comme négligeables devant l'ordre de grandeur du taux de macroségrégation (Figure 3.35).

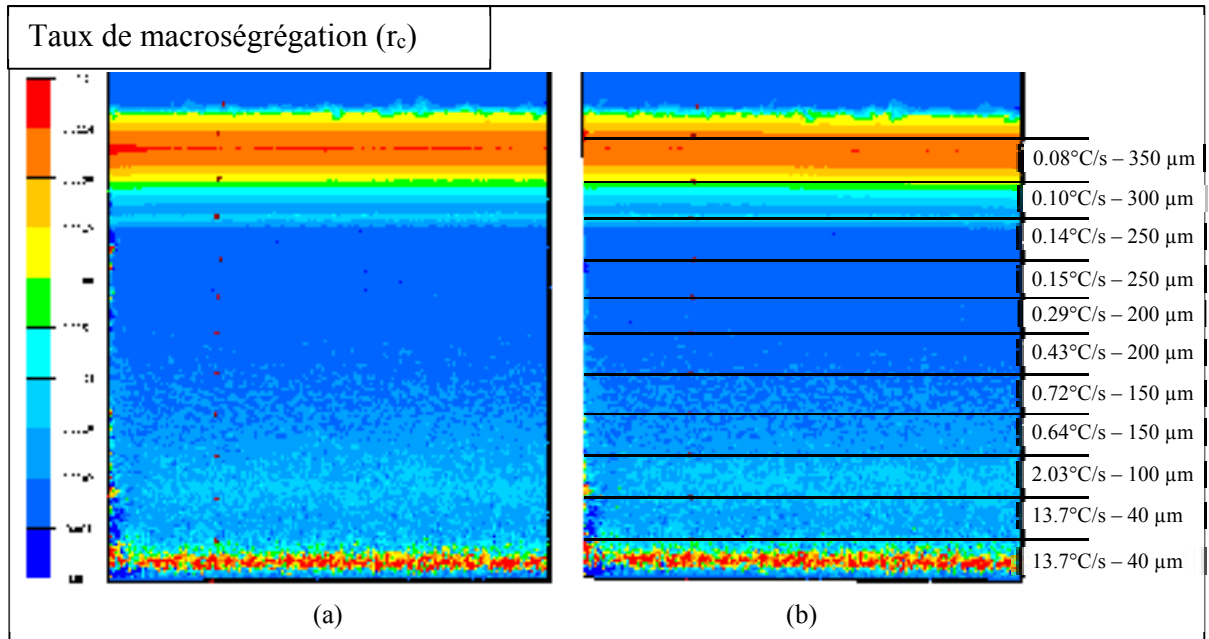


Figure 3.35 Taux de macroségrégation négative du carbone dans après la solidification d'un alliage 25CrMo4, (a) SDAS constant et (b) SDAS adaptatif

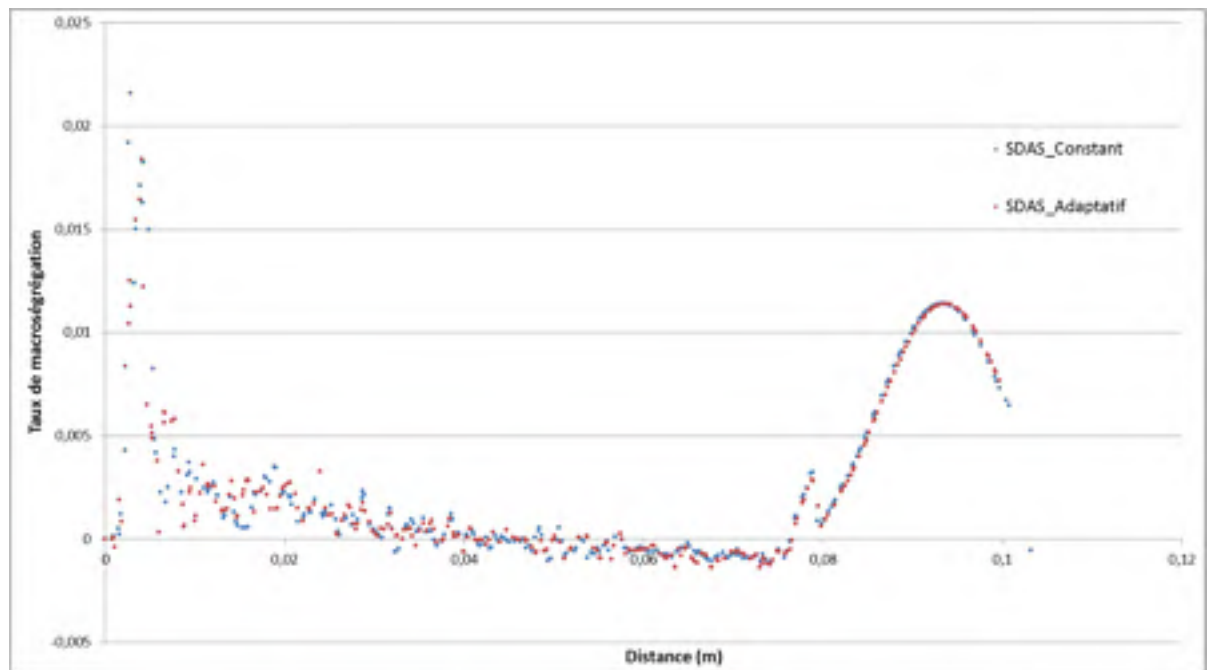


Figure 3.36 Taux de macroségrégation le long de la ligne des capteurs à SDAS constant (bleu) et SDAS adaptatif (rouge)

Cette non-influence pourrait être expliquée par un argument apporté par Wu qui explique que si la vitesse du fluide est inférieure à  $10^{-5}$  m/s, les mécanismes engendrant la macroségrégation seront seulement diffusifs (Wu et al., 2016). Les SDAS ont un impact sur la perméabilité, cette perméabilité reflète la capacité du fluide à passer à travers la structure solide. Ainsi, la macroségrégation influencée par la perméabilité est un mécanisme convectif. L'influence d'adapter les SDAS pourrait être donc accrue pour des vitesses fluide de plus grande intensité.

D'après les mesures réalisées sur la taille des SDAS dans un lingot de grande taille (partie 3.4). Les tailles maximales de ces dernières atteignent 650  $\mu\text{m}$  ce qui équivaut à un peu moins du double des longueurs des SDAS simulés. Pour aller plus loin, il serait intéressant de faire la simulation à des vitesses plus faibles afin de considérer une perméabilité plus élevée (Figure 3.36).

### 3.6.2 Lingot de 40 t

Deux objets expérimentaux pourront être utilisés afin de discuter des résultats numériques de la macroségrégation dans les lingots de 40 t, le premier sera la carte de macroségrégation de la partie haute du lingot (masselotte + 30 cm du lingot) et le deuxième sera la carte d'un lingot de 40 t forgé et traité thermiquement. La Figure 3.37 est le résultat de la prédiction du taux de macroségrégation après les solidifications partielles et totale du lingot (la diffusion solide est considérée comme négligeable), les SDAS constants sont considérés d'une longueur de 200 microns, ces derniers ont été choisis d'après ce qui est utilisé dans les modèles actuels, Gouttebroze et al., 2005 utilisent 100 microns et Zhang et al., 2017 utilisent 200 microns pour un lingot de 40 t également. L'algorithme utilisé est l'algorithme thermomécanique car comme on l'a vu précédemment, la contraction solide est responsable d'une grande part de la macroségrégation.

Tout d'abord, les tendances prédites ne correspondent pas dans leur totalité à ce qui est rencontré sur les cartes de macroségrégation usuelles dans les lingot de grande taille. La ségrégation positive est répartie proche des parois du lingot et dans la masselotte. Ensuite, la

poche de ségrégation négative est bien apparente dans le bas du lingot mais ne peut être assimilée à la sédimentation des grains équiaxes car ce phénomène n'est pas simulé par Thercast, le deuxième phénomène formant cette zone est la diffusion solutale lors de la solidification liquide-solide (E. J. Pickering, 2013). Finalement, la zone transitoire entre le centre et les bords du lingot de 40 t est constituée principalement d'un taux de macroségrégation négative, ce qui est aberrant par rapport aux résultats rencontrés dans la littérature et sur les carte de macroségrégation des lingots expérimentaux. (Partie 2.3)

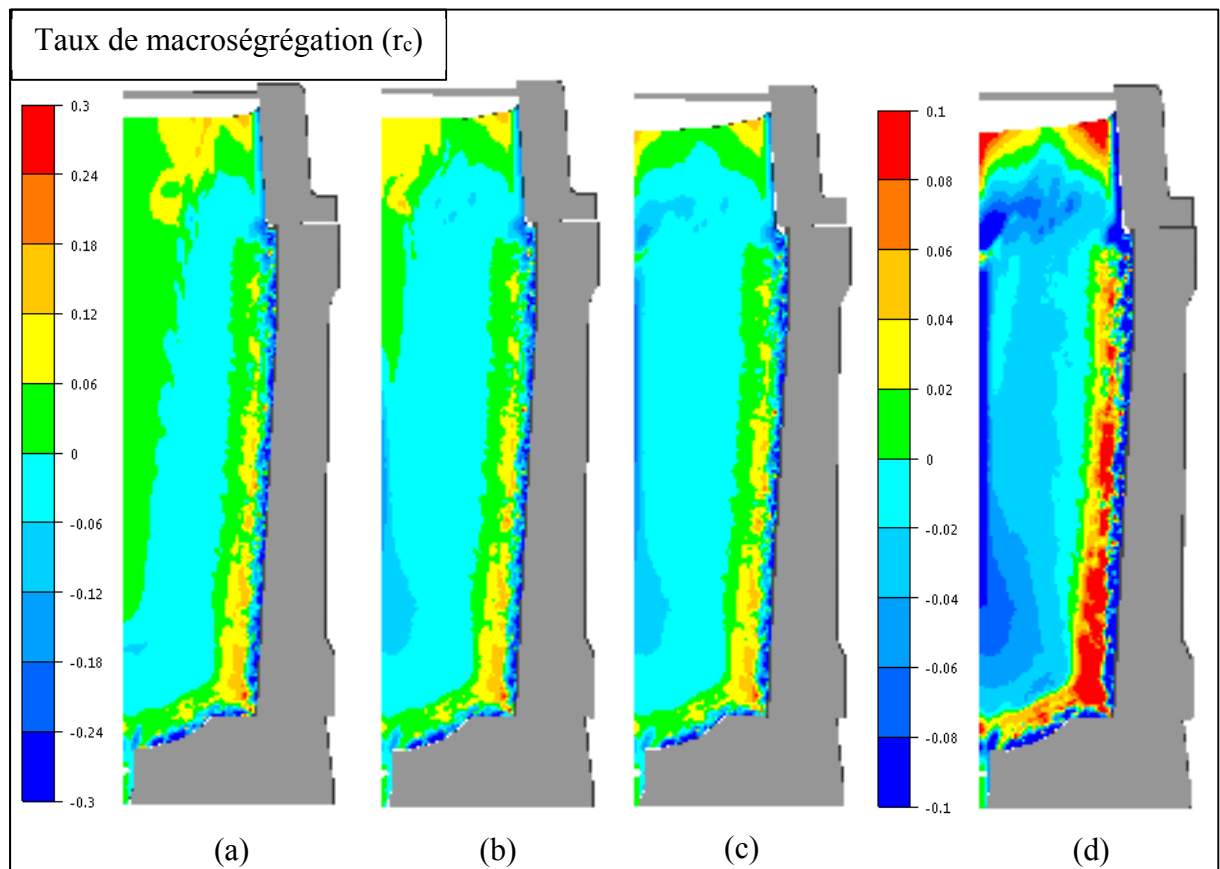


Figure 3.37 Taux de macroségrégation sur un lingot de 40 t après (a) 4 h 39, (b) 7 h 59, (c) 14 h 49 (échelle 1) et (d) 14 h 49 (échelle 2) de solidification

Dans un deuxième temps vient la discussion sur l'amplitude des taux de macroségrégation dans les zones pouvant être vérifiées expérimentalement. Si la comparaison est faite avec la masselotte du haut de la partie du lingot découpé (masselotte + 30 cm), les taux de

macroségrégation maximums rencontrés sont à peu près cinq fois moins importants dans la prédiction numérique sur l'axe de rotation du lingot. Une autre zone, dans le coin supérieur droit de la masselotte est prédite comme macroségrégée positivement mais n'apparaît pas dans l'expérimental. Cette erreur pourrait venir des conditions d'échanges thermiques proches des parois. Les zones macroségrégées positivement proches des parois, prédisent des taux de macroségrégation de  $r = 0.1$ , ce qui est proche des taux de ségrégation rencontrés dans l'expérimental (environ entre  $r = 0$  et  $r = 0.05$ ). La grande différence entre l'expérimental et la prédiction numérique provient de la zone de macroségrégation négative dans la masselotte prévoyant des taux entre  $r = 0$  et  $-0.2$  ce qui est largement différent de ce qui est mesuré dans la même zone du lingot ( $r = 0$  à  $0.3$ ). La carte de macroségrégation du lingot post-forgé (Annexe V) est à prendre avec plus de recul mais celle-ci démontre une zone de macroségrégation négative dans le bas du lingot proche de  $r = -0.1$  ce qui est trois fois moindre que les taux minimum prédits ( $r = -0.3$ ).

Finalement, ces résultats démontrent que le modèle peut être proche de l'expérimental en thermique ou même thermomécanique mais a des limites quand il s'agit de simuler la macroségrégation d'où les efforts mis en place par Transvalor afin de raffiner le maillage dans les zones critiques à intervalle de temps régulier (Gouttebroze et al., 2005). L'amélioration en ce sens sur le logiciel commercial permettrait d'avoir des meilleurs rendus de la macroségrégation.

### **3.7 Conclusion partielle**

La littérature a montré que des lois existaient sur le comportement des SDAS et des températures de transition par rapport aux vitesses de refroidissement. Ces lois cependant ne concernent pas des vitesses de refroidissement relativement faibles que l'on trouve dans les lingots de grande taille. La simulation thermique a permis de faire le lien entre les vitesses de refroidissement lors de la solidification des échantillons et leurs propriétés, ce qui n'a jamais été fait auparavant pour des lingots de 40 t. Ainsi :



- Une étude sur la morphologie des dendrites dans le haut d'un lingot de 40 t a été menée et une loi sur le comportement des SDAS à faibles vitesses de refroidissement a été développée. Une comparaison a été réalisée par rapport à la littérature. Une amélioration pourrait être apportée en réalisant des mesures dans le bas du lingot afin de réduire la probabilité d'avoir des inclusions ou alors de proposer à l'industriel Finkl Steel (Sorel) d'ajouter lors de ses coulées, un agent inoculant.
- L'analyse des températures de transition par rapport à la vitesse de refroidissement a été faite. Le changement de ces températures est assez faible par rapport à l'ordre de grandeur des vitesses de refroidissement rencontré dans les lingots de grande taille (1 K/min). Pour des lingots de grande taille, il n'est donc pas forcément justifiable d'adapter les températures de transition par rapport à la vitesse de refroidissement contrairement à des procédés ayant de grandes vitesses de refroidissement (ex : soudage). De plus, la répétabilité des mesures pourrait être améliorée en introduisant dans le four une anode sacrificielle afin d'éviter tout changement de composition.
- Le modèle à solidification unidirectionnelle a permis d'adapter le SDAS en fonction de son comportement par rapport à la vitesse de refroidissement d'après la loi de Won). Cette approche a permis de mettre en évidence les phénomènes locaux qui se passent dans un lingot de grande taille, surtout au niveau de la diffusion. L'impact d'adapter les SDAS est faible mais pourrait être justifiable avec des vitesses de fluides plus rapides pour augmenter la convection thermo-solutale.
- Une discussion a été réalisée sur les limites de prédiction de la macroségrégation sur les modèles 40 t. Le logiciel commercial ne permettant pas de mettre des sous-programmes comme l'a fait Gouttebroze, il est difficile de rendre des prédictions de macroségrégation fiables sur des lingots de 40 t.



## CONCLUSION

Cette étude a permis de faire le lien entre les vitesses de refroidissement et la macroségrégation dans un lingot de 40 t à travers le comportement cinétique de la zone de transition liquide-solide, qui est une zone critique pour la macroségrégation. L'influence de la vitesse de refroidissement sur trois propriétés caractérisant cette zone a été étudiée, jusque-là considérées comme constantes (l'espace interdendritique secondaire, le liquidus et le solidus). Ensuite ces lois expérimentales ont été implantées dans le logiciel Thercast® en fonction de la vitesse de refroidissement afin de voir l'influence sur la macroségrégation.

Une méthodologie a été développée afin de mesurer et d'établir une loi de comportement de l'espace interdendritique secondaire (SDAS) en fonction de la vitesse de refroidissement dans un lingot de 40 t. Ces mesures ont permis de remettre en question des lois de comportement déjà existantes dans la littérature. La loi trouvée dans la littérature prévoit des SDAS deux fois plus grandes (1000  $\mu\text{m}$ ) que les mesures réalisées sur un lingot de 40 t.

Une procédure d'analyse thermique afin d'étudier les températures de transition (liquidus ( $T_L$ ) et solidus ( $T_s$ )) et l'enthalpie a été mise en place à l'aide d'un DSC. Cette étude a permis de se rendre compte de l'ordre de grandeur de ces variations par rapport à celui des vitesses de refroidissement dans un lingot de grande taille. Les résultats obtenus dans le cadre de cette étude seraient plus intéressants sur des procédés avec de grandes vitesses de refroidissements comme le soudage.

Un modèle numérique de solidification unidirectionnelle de petites dimensions a été développé afin de reproduire les vitesses de refroidissement dans un lingot de 40 t. Celui-ci a permis d'étudier l'influence de l'adaptation des SDAS en fonction de la vitesse de refroidissement sur les prédictions de macroségrégation. Cependant, cette adaptation a un effet négligeable sur les cartes de macroségrégation.

Finalement, une discussion a été apportée sur les limites du modèle du lingot de 40 t en termes de prédiction de la macroségrégation. Des arguments sur la méthodologie à développer ont été avancés notamment au niveau du maillage adaptatif permettant l'amélioration des rendus de macroségrégation.

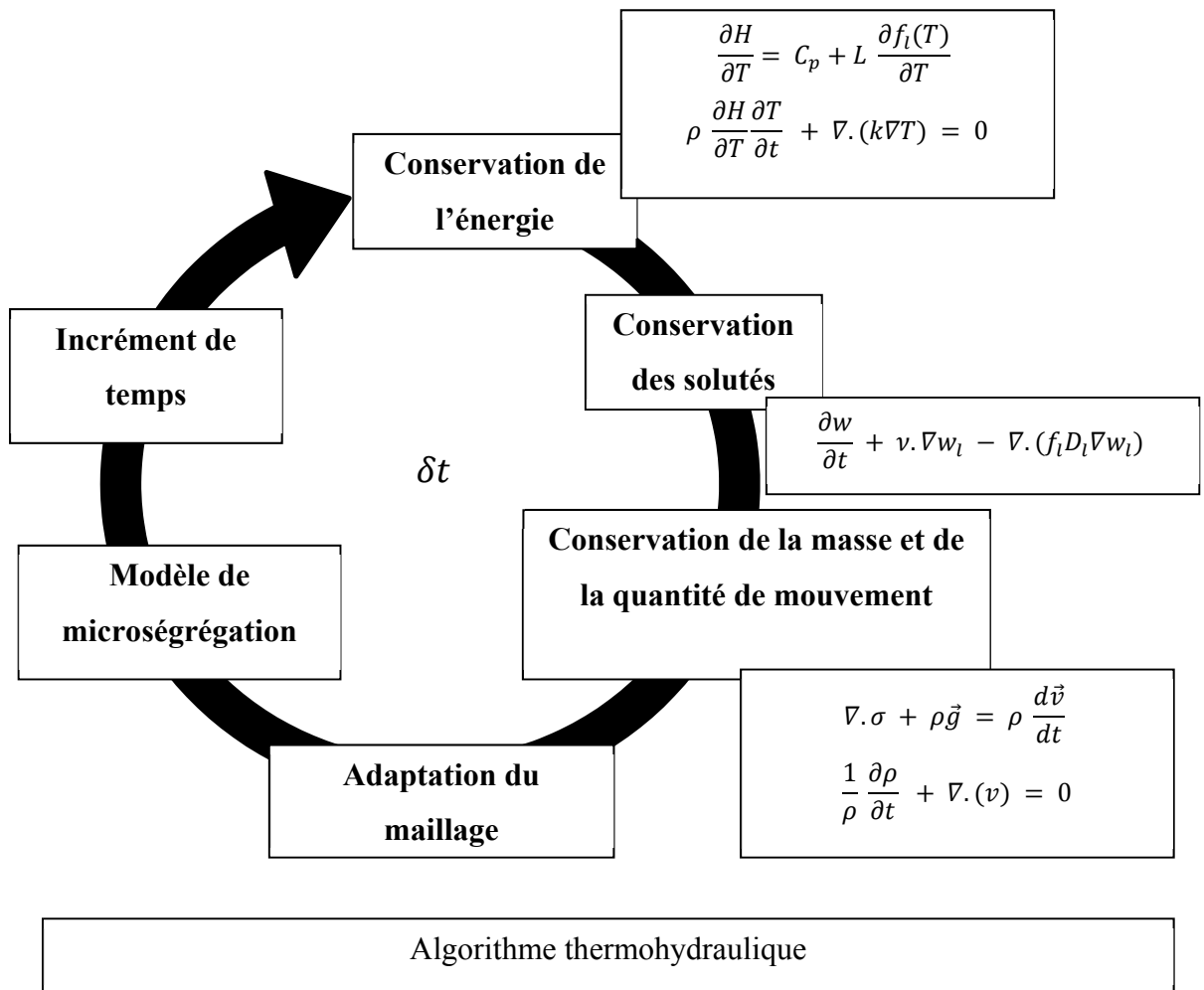
## RECOMMANDATIONS

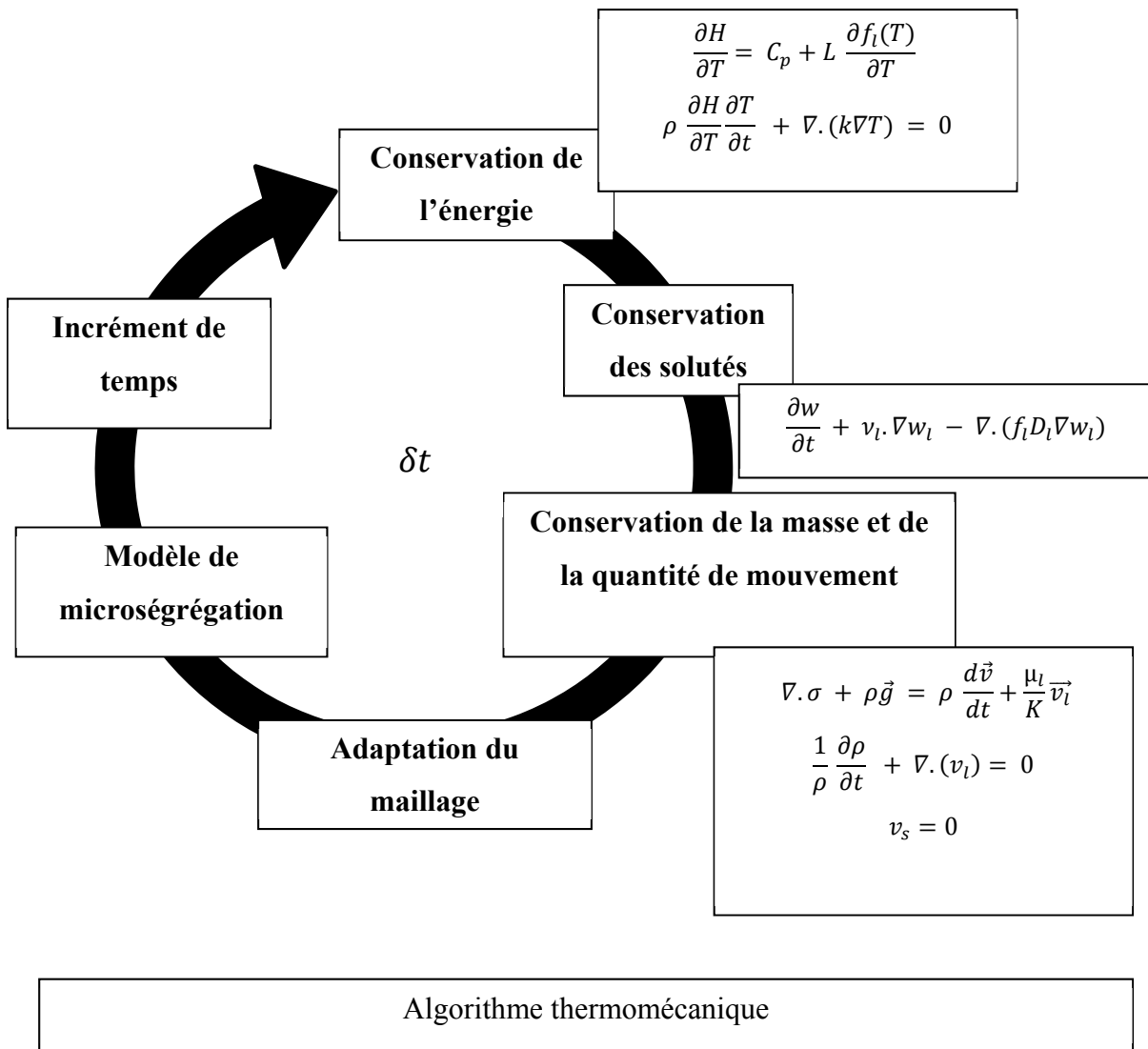
- Lors de l'étude de l'évolution des SDAS (Partie 3.4) en fonction de la vitesse de refroidissement dans les lingots de grande taille, un plus grand nombre de mesures pourrait permettre d'affiner la loi. Ces mesures pourraient être réalisées à différentes hauteurs du lingot de 40 t afin de s'éloigner le plus possible de la masselotte qui a un régime de refroidissement particulier et qui concentre les défauts comme les inclusions.
- Pendant les essais d'analyse thermique avec le DSC (Partie 3.5), le changement de composition en carbone est problématique et ne permet pas une bonne répétabilité. La possibilité de mettre une anode sacrificielle à l'intérieur de l'enceinte permettrait peut-être de diminuer l'effet du carbone s'échappant de l'échantillon. De plus, un plus grand nombre d'essais à des vitesses de refroidissement plus nombreuses serait intéressant et permettrait d'avoir plus de points afin réaliser la régression (ex : 20 K/min et 40 K/min).
- Pour améliorer les simulations de la macroségrégation dans les lingots de 40 t (Partie 3.6.2), réduire la taille du lingot pourrait permettre d'avoir des tailles de maille beaucoup plus proche de ce qui est utilisé dans la littérature et permettrait d'avoir de meilleure prédiction sur la macroségrégation. Une étude avec différente taille de lingot pourrait être intéressante afin de savoir quelles dimensions permettraient d'avoir des prédictions sur la macroségrégation fiables.
- Finalement, un maillage adaptatif avec une méthode de raffinement et d'anisotropie des mailles par rapport aux gradients critiques permettraient d'avoir de meilleurs rendus dans le cas de la simulation de la macroségrégation dans les lingots de 40 t (Partie 3.6.2).



## ANNEXE I

### THERCAST® : Algorithme thermohydraulique et thermomécanique

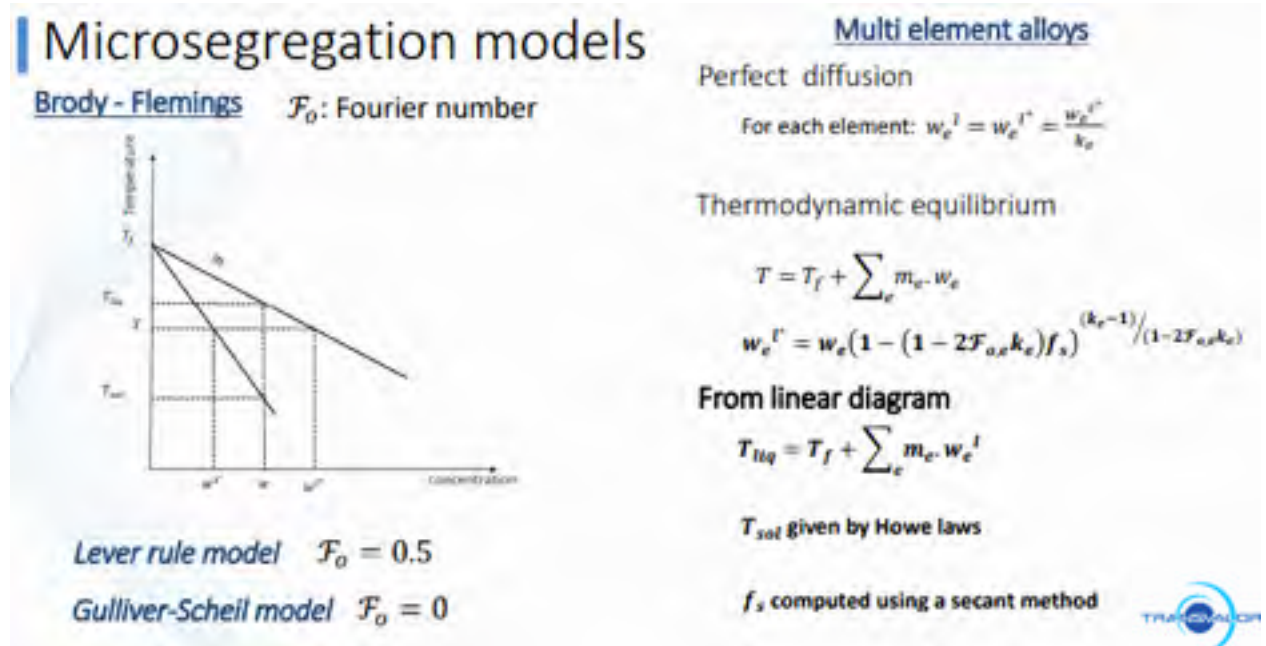






## ANNEXE II

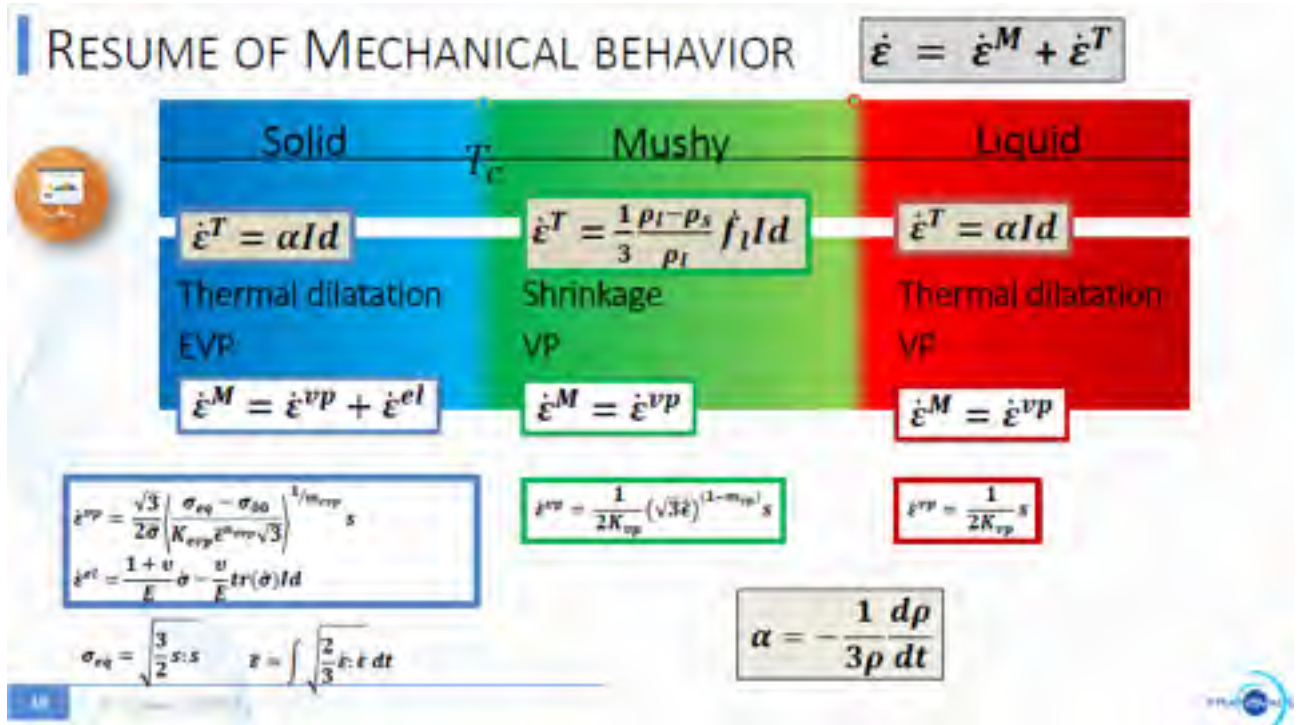
### THERCAST® : Modèle de microségrégation utilisé





## ANNEXE III

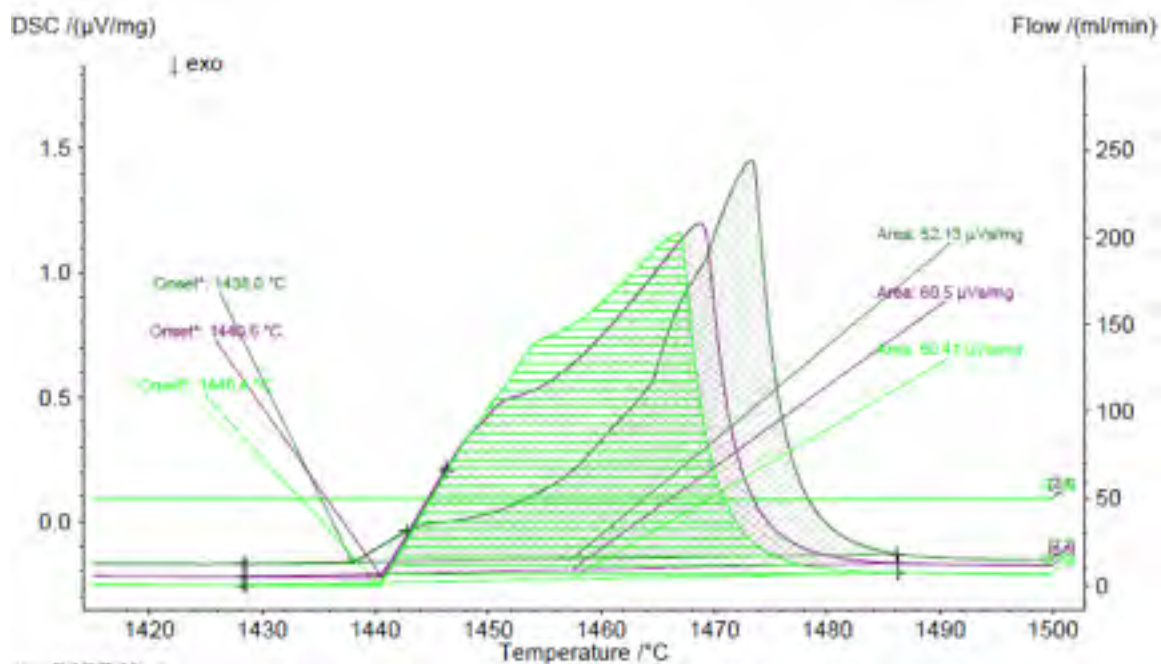
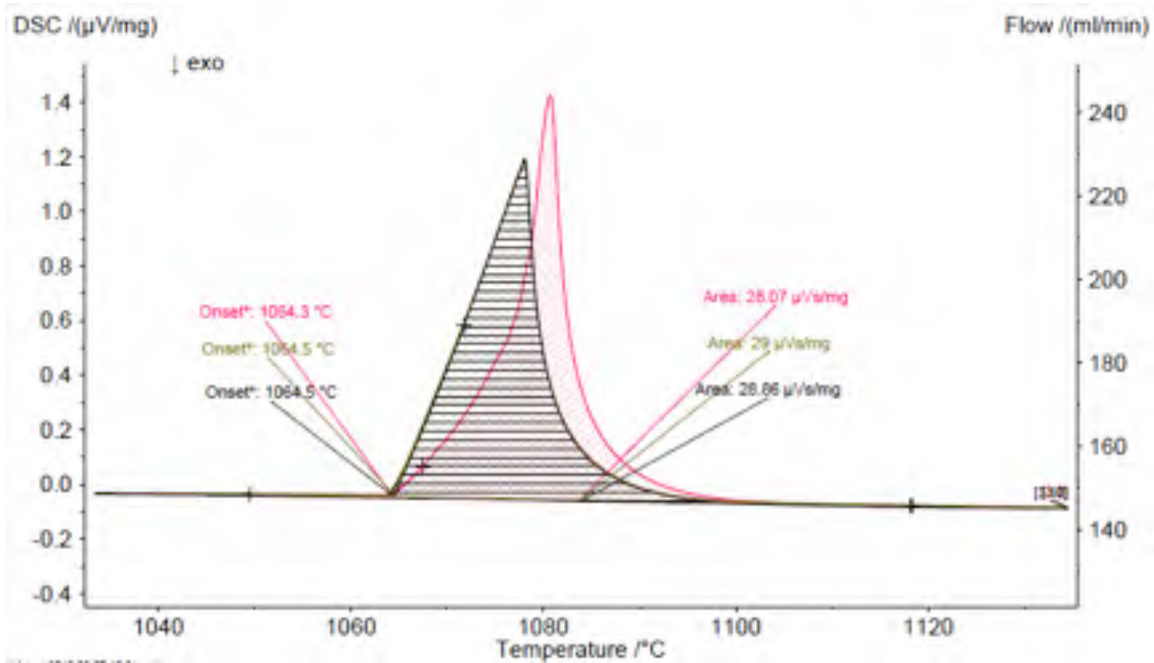
### THERCAST® : Modèle mécanique





## ANNEXE IV

### DSC : Calibration



## ANNEXE V

## Taux de macroségrégation du carbone le lingot après forgeage et traitement thermique

0,03	0,01	0,01	0,02	0,05	0,06	0,06	0,09	0,10	0,20	0,20	0,26	0,27	0,29	0,23	0,21	0,14	0,10	0,08	0,04	0,04	0,07	0,01	0,02	0,04
0,11	0,09	0,15	0,11	0,13	0,09	0,10	0,22	0,25	0,31	0,30	0,34	0,27	0,33	0,28	0,21	0,18	0,14	0,13	0,08	0,12	0,13	0,01	0,04	0,08
0,21	0,12	0,25	0,22	0,23	0,18	0,14	0,30	0,36	0,43	0,36	0,49	0,26	0,40	0,35	0,40	0,33	0,34	0,27	0,27	0,16	0,18	0,30	0,18	0,14
0,16	0,12	0,11	0,13	0,13	0,21	0,16	0,21	0,27	0,36	0,31	0,25	0,21	0,28	0,23	0,27	0,22	0,14	0,09	0,10	0,10	0,06	0,04	0,04	0,05
0,14	0,20	0,30	0,23	0,13	0,25	0,19	0,26	0,33	0,36	0,48	0,36	0,21	0,42	0,38	0,39	0,41	0,25	0,23	0,20	0,19	0,19	0,18	0,13	0,20
0,13	0,10	0,11	0,17	0,18	0,21	0,13	0,19	0,28	0,21	0,40	0,31	0,23	0,28	0,30	0,20	0,25	0,17	0,13	0,09	0,16	0,12	0,17	0,07	0,15
0,11	0,12	0,16	0,15	0,18	0,15	0,17	0,19	0,33	0,20	0,27	0,28	0,18	0,32	0,49	0,19	0,26	0,24	0,16	0,11	0,20	0,15	0,14	0,12	0,14
0,11	0,17	0,16	0,14	0,13	0,18	0,18	0,23	0,26	0,21	0,28	0,29	0,14	0,26	0,27	0,21	0,22	0,29	0,19	0,11	0,34	0,12	0,27	0,08	0,07
0,11	0,12	0,15	0,14	0,17	0,19	0,23	0,27	0,24	0,20	0,29	0,29	0,16	0,26	0,22	0,20	0,23	0,25	0,17	0,14	0,14	0,12	0,14	0,11	0,08
0,11	0,09	0,12	0,14	0,14	0,17	0,24	0,25	0,20	0,19	0,33	0,25	0,11	0,33	0,33	0,18	0,17	0,19	0,22	0,15	0,24	0,20	0,15	0,14	0,09
0,11	0,11	0,10	0,11	0,15	0,18	0,23	0,30	0,24	0,25	0,24	0,19	0,12	0,24	0,24	0,22	0,17	0,26	0,19	0,15	0,11	0,14	0,05	0,10	0,07
0,13	0,09	0,07	0,16	0,19	0,19	0,20	0,22	0,23	0,23	0,21	0,16	0,10	0,23	0,22	0,14	0,15	0,23	0,14	0,11	0,12	0,11	0,10	0,09	0,09
0,12	0,08	0,10	0,14	0,16	0,19	0,16	0,21	0,22	0,23	0,25	0,21	0,09	0,26	0,23	0,15	0,17	0,23	0,11	0,12	0,11	0,11	0,08	0,14	0,07
0,12	0,04	0,10	0,09	0,12	0,22	0,21	0,29	0,19	0,21	0,17	0,17	0,06	0,19	0,19	0,13	0,14	0,24	0,16	0,09	0,13	0,09	0,06	0,12	0,08
0,10	0,11	0,08	0,07	0,07	0,17	0,14	0,25	0,18	0,18	0,20	0,17	0,07	0,18	0,14	0,13	0,13	0,24	0,10	0,13	0,13	0,11	0,08	0,08	0,05
0,07	0,07	0,08	0,09	0,08	0,09	0,12	0,21	0,17	0,14	0,10	0,11	0,11	0,12	0,17	0,13	0,13	0,30	0,13	0,14	0,08	0,08	0,07	0,11	0,09
0,07	0,13	0,07	0,12	0,11	0,10	0,18	0,18	0,14	0,18	0,13	0,13	0,14	0,15	0,10	0,09	0,08	0,17	0,14	0,09	0,14	0,17	0,09	0,11	0,07
0,07	0,14	0,09	0,14	0,08	0,15	0,12	0,25	0,14	0,09	0,11	0,06	0,06	0,04	0,03	0,05	0,05	0,13	0,04	0,04	0,03	0,01	0,00	0,00	0,00
0,13	0,04	0,11	0,14	0,09	0,11	0,30	0,19	0,18	0,18	0,19	0,11	0,14	0,10	0,15	0,08	0,07	0,07	0,19	0,11	0,16	0,10	0,09	0,13	0,08
0,08	0,08	0,09	0,06	0,08	0,18	0,11	0,17	0,17	0,20	0,35	0,14	0,17	0,19	0,16	0,09	0,08	0,09	0,09	0,19	0,14	0,09	0,09	0,08	0,11
0,06	0,09	0,06	0,14	0,12	0,28	0,18	0,14	0,13	0,08	0,08	0,11	0,02	0,13	0,13	0,11	0,12	0,11	0,16	0,22	0,22	0,15	0,20	0,08	0,14
0,06	0,10	0,06	0,08	0,06	0,26	0,14	0,09	0,14	0,07	0,07	0,10	-0,01	0,11	0,14	0,13	0,12	0,10	0,08	0,17	0,21	0,18	0,24	0,08	0,09
0,09	0,08	0,06	0,09	0,06	0,25	0,14	0,08	0,12	0,07	0,08	0,07	-0,03	0,14	0,09	0,12	0,10	0,11	0,15	0,16	0,15	0,14	0,20	0,14	0,14
0,08	0,07	0,08	0,14	0,12	0,22	0,13	0,14	0,09	0,05	0,06	0,07	-0,03	0,09	0,07	0,11	0,10	0,16	0,12	0,16	0,17	0,13	0,11	0,16	0,11
0,06	0,08	0,06	0,07	0,08	0,17	0,15	0,12	0,04	0,02	-0,01	0,09	-0,03	0,07	0,06	0,07	0,09	0,08	0,07	0,12	0,19	0,16	0,13	0,08	-0,01
0,06	0,06	0,05	0,04	0,16	0,18	0,07	0,04	0,05	0,10	0,07	0,07	-0,07	0,09	0,10	0,10	0,09	0,10	0,07	0,14	0,16	0,13	0,11	0,11	0,06
0,04	0,06	0,04	0,16	0,11	0,08	0,07	0,03	0,02	0,07	0,09	0,06	-0,10	0,06	0,04	0,10	0,12	0,08	0,08	0,06	0,10	0,16	0,12	0,14	0,07
0,05	0,10	0,07	0,13	0,04	0,09	0,04	0,09	0,02	0,03	0,05	0,02	-0,08	0,04	0,03	0,09	0,04	0,12	0,10	0,08	0,12	0,12	0,17	0,15	0,10
0,08	0,11	0,09	0,09	0,05	0,03	0,03	0,04	0,03	0,01	0,01	0,02	-0,08	0,01	0,00	0,01	0,02	0,14	0,05	0,07	0,10	0,09	0,17	0,18	0,08
0,08	0,08	0,10	0,10	-0,02	0,06	0,10	-0,01	0,04	-0,03	0,02	0,02	-0,08	0,01	0,00	0,04	-0,01	0,03	0,00	0,06	0,07	0,06	0,18	0,13	0,08
0,03	0,10	0,09	0,03	-0,01	-0,01	0,05	-0,01	0,01	0,04	-0,03	-0,07	-0,10	0,01	0,00	0,07	0,02	0,05	0,02	0,04	0,02	0,06	0,13	0,08	0,09
0,04	0,07	0,09	0,03	-0,03	0,02	-0,02	-0,02	0,03	-0,03	-0,03	-0,07	-0,08	-0,05	0,03	0,02	0,03	0,01	0,05	0,04	0,04	0,05	0,15	0,07	0,10
0,04	0,08	0,08	0,06	0,00	0,04	-0,01	0,03	0,07	-0,02	-0,02	0,00	-0,09	0,00	-0,06	-0,01	0,02	0,03	0,05	0,03	0,08	0,03	0,18	0,13	0,14
0,05	0,04	0,04	0,01	0,01	0,08	0,00	0,02	0,02	0,01	-0,01	-0,04	-0,08	-0,02	0,01	0,02	-0,01	0,04	0,06	0,06	0,04	0,02	0,13	0,10	0,12
0,00	-0,02	-0,01	-0,01	-0,04	-0,07	-0,06	-0,06	-0,07	-0,06	-0,07	-0,07	-0,07	-0,10	-0,07	-0,08	-0,09	-0,07	-0,07	-0,07	-0,04	-0,03	-0,02	0,01	0,01

## ANNEXE VI

**Article : “3D FEM simulation of the effect of cooling rate on SDAS and macrosegregation of a high strength steel”**

**Gary Brionne<sup>1, a</sup>, Abdelhalim Loucif<sup>1, b</sup>, Chunping Zhang<sup>1, c</sup>, Louis-Philippe Lapierre-Boire<sup>2, d</sup> and Mohammad Jahazi<sup>1, e</sup>**

<sup>1</sup>Ecole de Technologie Supérieure (ETS), Montreal, QC H3C 1K3 - Canada

<sup>2</sup>Finkl Steel – Sorel, Saint-Joseph-de-Sorel, QC J3R 3M8 - Canada

<sup>a</sup>gary.brionne.1@ens.etsmtl.ca, <sup>b</sup>Abdelhalim.Loucif@etsmtl.ca,

<sup>c</sup>chunping.zhang.1@ens.etsmtl.ca, <sup>d</sup>lplapierre@finkl.com, <sup>e</sup>[mohammad.jahazi@etsmtl.ca](mailto:mohammad.jahazi@etsmtl.ca)

Journal of Materials Science Forum, publié par Trans Tech Publications/ Présenté à Thermec'2018

**Keywords:** SDAS, cooling rate, unidirectional solidification, macrosegregation

**Abstract.** Secondary dendrite arm spacing (SDAS) is a macrosegregation parameter directly linked to content of macrosegregation through cooling rates. The aim of this paper is to highlight the effect of cooling rate on the SDAS and macrosegregation patterns in a high strength steel. For this purpose, directionnal solidification in a cylinder was modeled with a plane-front solidification. Two cylinders were modeled with different boundary conditions ( $T_{\text{surface}} = 1000^{\circ}\text{C}$  and  $1200^{\circ}\text{C}$ ). Using the FEM software Thercast, 3D macrosegregation maps were generated with thermomechanic algorithm taking into account metal shrinkage. Using Won's equation, the influence of cooling rates in the mushy zone on SDAS was determined. The results indicated that a 72% lower difference in the area of negative macrosegregation zone (macrosegregation ratio ( $r_{\text{seg}} < -0.016\%$ ) for lower cooling rate ( $T_s = 1200^{\circ}\text{C}$ ). The difference of the area for positive segregation was 85% lower for higher cooling rates.

## Introduction

Steel casting industries are currently faced with increasing demand for large size ingots in aerospace, transport and energy sectors. Large size ingots are exposed to chemical heterogeneities referred to macrosegregation, as shown by Pickering et al. [1] using XRF

mapping or by Loucif et al. using optic spectroscopy mapping [2]. Such chemical heterogeneities must be considered and identified properly to reckon with the variation of mechanical properties and to certify quality. Experimental studies of macrosegregation are time-consuming and costly, promoting the development of numerical simulation tools. The predictive accuracy of numerical methods depends on input data such as thermophysical properties (e.g. liquidus, solidus, specific heat capacity, enthalpy of transformation, density, etc). However, these parameters are often considered as a function of temperature or not considered in the analysis (e.g. SDAS), despite numerous reports on the interdependencies of these material properties with the cooling rate [3-5].

SDAS is used to name the distance between two secondary dendrites. The latter estimates the permeability at the interface between the liquid and the solid [6]. The permeability has an influence on macrosegregation [6]. A large number of experimental evaluations of dendrite growth with a specific cooling rate or solidification gradient have been carried out in steels, [3,4,7] and various techniques have been developed to estimate the SDAS evolution in directionnal solidification: Senk et al. [7] have linked SDAS with the distance from the chilling surface for various slab geometries; Weisberger et al. [3] and Ferreira et al. [4] have used other formulations linking SDAS and cooling rate during directional solidification. The above works have resulted in the establishment of empirical relationship between the SDAS and the solidification parameters. In this work, a model of unidirectional solidification of a cylinder was developed in order to study the impact of changing ranges of cooling rates on macrosegregation patterns and SDAS in high strength steel.

### **Model setup**

A cylinder of 200 mm in height and 200 mm in diameter was developed using Catia V5 software. Then to reduce calculation time, a slice of  $6^\circ$  was simulated using Thercast, considering axisymmetric conditions (Fig. 1). Gravity was set to simulate vertical condition as also used by Wu et al. [8] to quantify the impact of thermal and solutal buoyancy phenomena on macrosegregation. Then the shrinkage of the metal has been considered. The selected dimensions are similar to those used in [8-10].



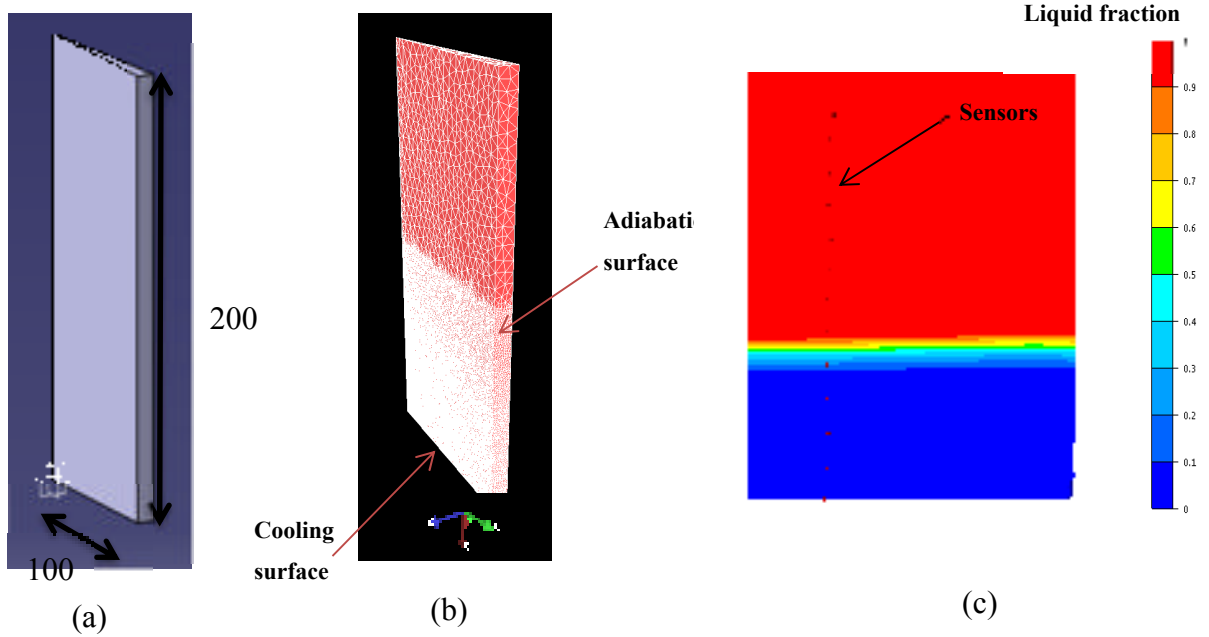


Fig. 1: Directional solidification model: (a) geometry, (b) meshing and (c) sensor positions.

The initial molten metal temperature was 1570 °C. The surfaces of the model are adiabatic. One surface was heated ( $T_{\text{surface}}$ ) at 1000°C and 1200°C in order to reproduce few cooling rate gradients observed in a large size ingot during the solidification. These gradients have been determined with a numerical simulation of 63'' ingot solidification. Solidification was studied over a 10 cm length, the remaining 10 cm were set to minimise edge effects. Furthermore, a mesh size from 1 mm to 2 mm was chosen, based on the mesh size study from Gouttebroze et al. [6]. A more refined mesh was used to smooth the macrosegregation gradient near critical region. Thus, a discretization in twelve equal cross sections was set up applying Eulerian sensors to monitor cooling rate of the mushy zone during solidification. Macrosegregation modeling is based on a two-phased solidification system with liquid zone and solid zone. The liquid zone is considered by a Newtonian model and the solid has an elasto-visco-plastic behaviour [6].

On the other hand, using the empirical equation (1) developed by Won [5], SDAS,  $\lambda_2$ , was calculated. This equation has been defined on a range of high cooling rate (between 5°C/s and 0.03°C/s). The Won's equation has been used in its application domain, fitting with the higher

cooling rates of the range encountered in a large size ingot. In this equation,  $C_r$  is the cooling rate and  $C_c$  is the carbon content.

$$\lambda_2 = (169.1 - 720.9 \cdot C_c) \cdot C_r^{-0.4935} \quad \text{for } 0 < C_c \leq 0.15.$$

$$\lambda_2 = 143.9 \cdot C_r^{-0.3616} \cdot C_c^{0.5501 - 1.996\%C_c} \quad \text{for } 0.15 < C_c.$$

(1)

SDAS have been drawn according to Won's equation (Fig. 2). Profiles of temperature evolution with time were plotted for the twelve sensors as shown in Fig. 3. Every time a sensor encounters the mushy zone, the slope of the curve is approximated to obtain the cooling rate as a constant [6].

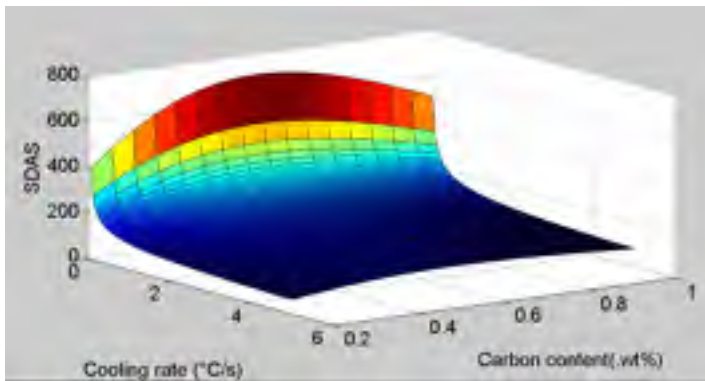


Fig. 2 : SDAS evolution as a function of cooling rate and carbon content.

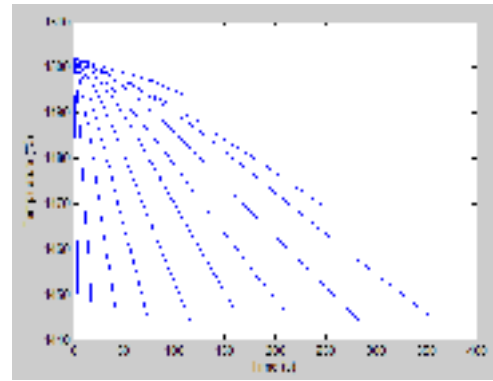


Fig. 3 : Temperature as a function of time in the mushy zone.

Simulations were carried out for a 25CrMo4 alloy from the Thercast software database; Table 1 presents its chemical composition. Carbon content was considered constant all along the simulation (0.25 wt%). Only the cooling rate will be considered as variable. Three categories of material parameters were used as input: thermophysical (specific heat, enthalpy of transformation and thermal diffusivity), thermo-mechanical (viscosity, Young modulus, Poisson ratio) and those used for macrosegregation simulation (liquidus slope, solute partition ratio, solute expansion coefficient). A mushy zone exists in the temperature range from the liquidus (1501 °C) to the solidus (1445 °C) obtained from JMatPro [11].

**Table 1 : Chemical composition of 25CrMo4 steel [wt.%]**

C	Mn	Cr	Mo	Si
---	----	----	----	----

0.25	0.9	1.2	0.3	0.4
------	-----	-----	-----	-----

## Results and discussion

Two macrosegregation maps of carbon are shown in Fig. 4. The first one for lowest cooling rates ( $T_{\text{surface}} = 1200^{\circ}\text{C}$ ) during the solidification (Fig. 4a) and the second one  $T_{\text{surface}} = 1000^{\circ}\text{C}$  (Fig. 4b). It can be seen that with the range of cooling rate, a variation from  $40\text{ }\mu\text{m}$  to  $450\text{ }\mu\text{m}$  is observed according to Won's equation. Three distinct zones are observable (Fig. 4a): the positive macrosegregation zone above the solidification front (zone 1), a shading zone including negative macrosegregation (zone 2) and a positive segregation pocket below solidification front (zone 3). Negative macrosegregation is represented from  $-0.04\%$  to  $0\%$  of macrosegregation ratio ( $r_{\text{seg}}$ ) with nominal concentration  $C_0$  and  $C$  the current concentration, defined in equation (3) (Fig. 4). The red zone is positive macrosegregation zone and can be higher than  $0\%$  (Fig. 5).

$$r_{\text{seg}} = \frac{C_0 - C}{C_0} \quad (2)$$

Positive macrosegregation zone changes between the two maps, for higher cooling rates ( $T_{\text{surface}} = 1000^{\circ}\text{C}$ ), the positive macrosegregation (zone 1 and zone 3) area is 85% lower. The negative macrosegregation zone (zone 2) presents a change, this zone is 96% smaller for  $T_s = 1200^{\circ}\text{C}$ . Then, a shift of the ( $r_{\text{seg}} < -0.016\%$ ) area in this zone is observed. This area is 72% smaller for lower cooling rates ( $T_s = 1200^{\circ}\text{C}$ ). These changes can be explained by the fact that positive macrosegregation zone will be expanded with lower cooling rates. In the zone near the surface where the metal is solid, SDAS are considered higher for lower cooling rates. This phenomenon increases the surface of positive macrosegregation zone. In addition, zone 1 is the mushy zone, which is charged with positive macrosegregation. A range of smaller cooling rates leads to a larger mushy zone. This zone being larger makes the zone 2 smaller.

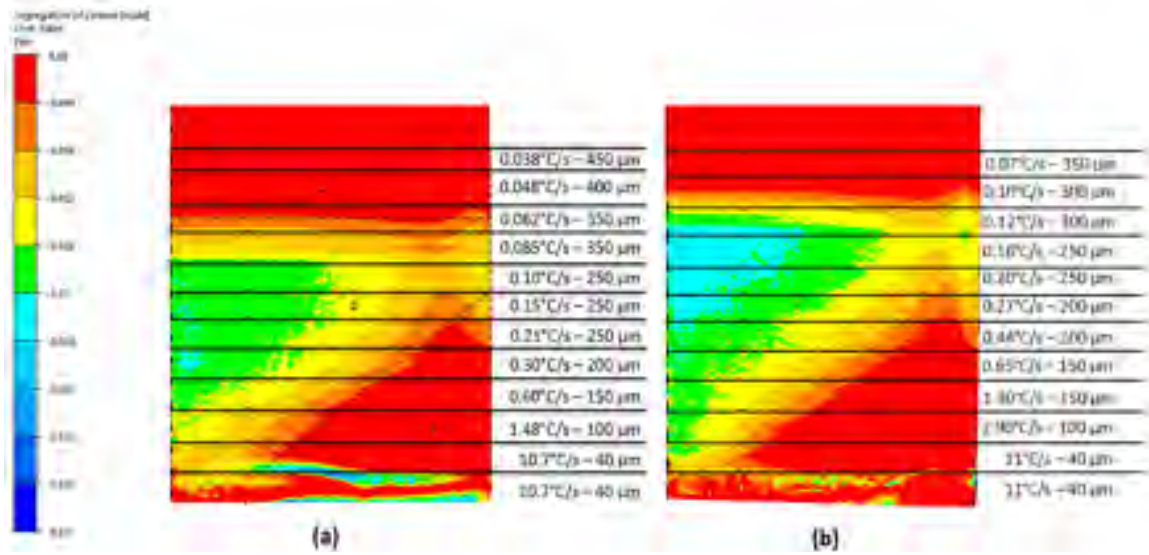


Fig. 4: Carbon negative macrosegregation patterns after solidification of 10 cm of 25CrMo4, (a)  $T_{\text{surface}} = 1200^{\circ}\text{C}$ , (b)  $T_{\text{surface}} = 1000^{\circ}\text{C}$ .

The positive macrosegregation pocket (zone 3) is caused by metal flow with a velocity field value of  $5 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$  (Fig. 5). This flow is mainly induced by metal shrinkage near the sides of the ingot, the macrosegregation ratio is up to about 21% for  $T_s = 1000^{\circ}\text{C}$  (Fig. 5) against 11% ( $T_s = 1200^{\circ}\text{C}$ ). Therefore, observation has to be focused at the center of the ingot where a less powerful melt flow occurs ( $5 \times 10^{-7} \text{ m.s}^{-1}$ ). A similar phenomenon was observed by Poirier et al. [12] in their work on the directionnal solidification of a Pb-Sn alloy. Furthermore, the metal shrinkage has a more significant influence on the macrosegregation ratio pattern than cooling rate.

The occurrence of positive macrosegregation in zone 1 can be explained by thermal and solutal buoyancies [8]. Thermal buoyancy is in the opposite direction to the solidification direction; solutal buoyancy is in the same direction due to the fact that carbon has a lower density than iron. Therefore, thermal buoyancy and solutal buoyancy have opposing behaviours, the solutal buoyancy supersedes thermal buoyancy bringing solute enriched into the bulk melt, and impoverishing solute concentration below the solid, Wu et al. [8] reached similar conclusions in their Pb-Sn alloy. The vortex in the upper zone of Fig. 5a is influenced by the opposing effects of thermal and solutal buoyancies [8,12].

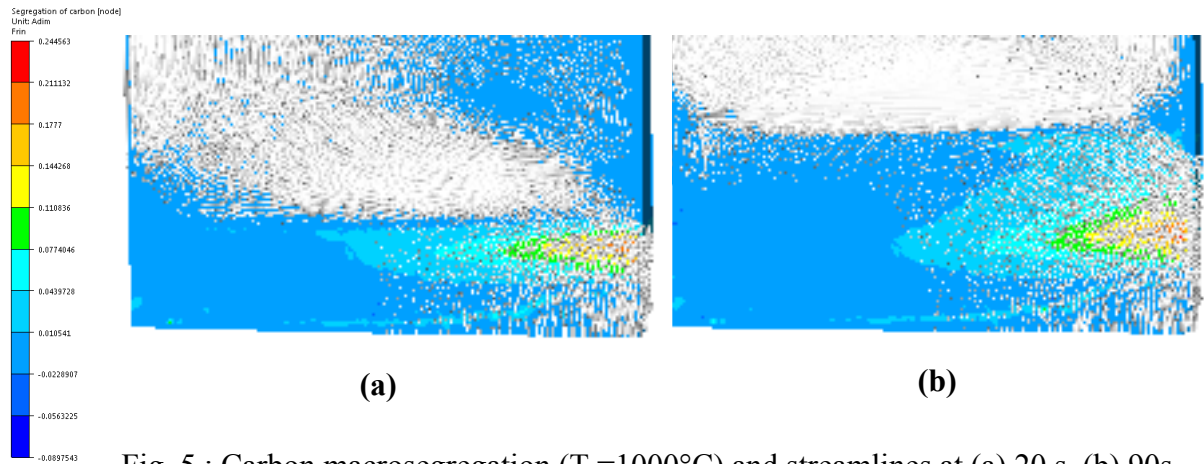


Fig. 5 : Carbon macrosegregation ( $T_s=1000^\circ\text{C}$ ) and streamlines at (a) 20 s, (b) 90s.

## Conclusion

A directional solidification model was developed to reproduce the order of magnitude of cooling rates encountered during solidification of large size ingots. SDAS has been determined all along the mushy zone path according to Won's equation which is used in its application domain. The following conclusions can be drawn from the present study: 1) In a 10 cm ingot, the variation of SDAS is from  $40\text{ }\mu\text{m}$  to  $350\text{ }\mu\text{m}$  for  $T_s = 1000^\circ\text{C}$  and from  $40\text{ }\mu\text{m}$  to  $450\text{ }\mu\text{m}$  for  $T_s = 1200^\circ\text{C}$ ; 2) Higher the cooling rate the smaller SDAS will be and the larger positive macrosegregation area will be (85%); 3) For high cooling rates, mushy zone positively macrosegregated will be smaller than small cooling rates; 4) The metal shrinkage has a significant effect on the macrosegregation ratio compared to cooling rates, the higher macrosegregation ratio is about 21%, it will increase at a larger scale for large-size ingot.

## References

- [1] E.J. Pickering, C. Chesman, S. Al-Bermani et al., A comprehensive case study of macrosegregation in a steel ingot, *Metall. and Materi. Trans. B* 46 (2015) 1860–1874.
- [2] A. Loucif, D. Shahriari, C. Zhang et al., Macrosegregation of alloying elements in hot top of large size high strength steel ingot, *Mater. Sci. Forum* 879 (2017) 1176–1181
- [3] B. Weisgerber, M. Hecht, K. Harste, Investigations of the solidification structure of continuously cast slabs, *Steel Res. Int.* 70 (1999) 403–411

- [4] A.F. Ferreira, E.G. de Melo, L.D. Ferreira, Prediction of secondary dendrite arm spacing for binary alloys by means of a phase field model, *Steel Res. Int.* 86 (2015) 58-64
- [5] Y.M. Won, B.G. Thomas, Simple model of microsegregation during solidification of steels, *Metall. and Mat. Trans. A* 32 (2001) 1755-1767
- [6] S. Gouttebroze, Modélisation 3D par éléments finis de la macroségrégation lors de la solidification d'alliages binaires, CEMEF (2005).
- [7] D. Senk, B. Engl, O. Siemon et al., Investigation of solidification and microsegregation of near-net-shape cast carbon steel, *Steel Res. Int.* 70 (1999) 368-372
- [8] M Wu, Numerical analysis of macrosegregation in vertically solidified Pb-Sn test castings – Part I: Columnar solidification, *Comp. Mater. Sci.* 124 (2016) 444–455
- [9] W. Liu, C. Xie, M. Bellet et al., 2-Dimensional FEM modeling of macrosegregation in the directional solidification with mesh adaptation, *Acta. Metall. Sin.* 22 (2009) 233-240
- [10] D.J. Hebditch and J.D. Hunt, Observations of ingot macrosegregation on model systems, *Metall. Trans.* 5 (1974) 1557-1564
- [11] C. Zhang, D. Shahriari, A. Loucif et al., Effect of thermo-physical properties on solidification behavior of large size high strength steel ingots, *SteelSim* (2017)
- [12] D.R. Poirier and J.C. Heinrich, Continuum model for predicting macrosegregation in dendritic alloys, *Mater. Charact.* 32 (1994) 287-298

## BIBLIOGRAPHIE

- Addad, A. (2007). *Contribution à l'étude expérimentale des microségrégations dans les aciers présentant une réaction péritectique*. Repéré à Zotero.
- Bennon, W. D., & Incropera, F. P. (1987). A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems- I. Model formulation. 10.
- Bleckmann, M., Gleinig, J., Hufenbach, J., Wendrock, H., Giebeler, L., Zeisig, J., . . . Kühn, U. (2015). Effect of cooling rate on the microstructure and properties of FeCrVC. *Journal of Alloys and Compounds*, 634, 200-207. doi: 10.1016/j.jallcom.2015.02.004
- Boettinger, W. J., Kattner, U. R., Moon, K.-W., & Perepezko, J. H. (2006). *DTA and Heat-Flux DSC Measurements of Alloy Melting and Freezing*. National Institute of Standards and Technology (NIST).
- Cambridge, U.o. Repéré à  
[https://www.doitpoms.ac.uk/tlplib/solidification\\_alloys/dendritic.php](https://www.doitpoms.ac.uk/tlplib/solidification_alloys/dendritic.php)
- Duan, Z., Tu, W., Shen, B., Shen, H., & Liu, B. (2016). Experimental Measurements for Numerical Simulation of Macrosegregation in a 36-Ton Steel Ingot. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 47, 3597-3606. doi: 10.1007/s11661-016-3531-6
- Ferreira, A. F., de Melo, E. G., & Ferreira, L. D.-L. (2015). Prediction of Secondary-Dendrite Arm Spacing for Binary Alloys by Means of a Phase-Field Model: Unpublished.
- Flemings, M. C., & Nereo, G. E. (1967, 1967). Macrosegregation : part 1. *Trans. Metall. Soc.*
- Gouttebroze, S., Bellet, M., Combeau, H., & Gobin, D. (2005). *Modélisation 3D par éléments finis de la macroségrégation lors de la solidification d'alliages binaires*.
- Grenet, J., & Legendre, B. (2010). Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC). Dans T. d. l'ingénieur (Éd.), *Techniques de l'ingénieur*. Repéré
- Gryc, K., Smetana, B., Zaludova, M., & Michalek, K. (2013). Thermal analysis of high temperature phase transformations of steel.
- Guillemot, G. (2017). Formation de structures de grains dans des Alliages à solidification dendritique - Modélisation couplée automates cellulaires et éléments finis. 229.
- Hebditch, D. J., & Hunt, J. D. (1974). Observations of ingot macrosegregation on model systems. *Metallurgical Transactions*, 5, 1557-1564. doi: 10.1007/BF02646326

- Hoó, C., Teleszky, I., Roósz, A., & Csepeli, Z. (2006). Estimation of the Cooling Rate on the Basis of Secondary Dendrite Arm Spacing in Case of Continuous Cast Steel Slab. *Materials Science Forum*, 508, 245-250. doi: 10.4028/[www.scientific.net/MSF.508.245](http://www.scientific.net/MSF.508.245)
- Il'inskii, V. A., Kostyleva, L. V., & Gabel'chenko, N. I. (2008). Instability of primary dendrite arms in columnar Chernov crystals. *Russian Metallurgy (Metally)*, 2008, 25-28. doi: 10.1134/S0036029508010059
- Jacobi, H., & Wünnenberg, K. (1999). Solidification structure and micro-segregation of unidirectionally solidified steels. *Steel Research*, 70, 362-367. doi: 10.1002/srin.199905654
- Kvíčala, M., Frydryšek, K., & Štamborská, M. (2015). Comparison of Experimentally Measured Temperature Gradient and Finite-Element-Method Simulations for Two Continuously Cast Bloom Heating Strategies. *International Journal of Thermophysics*, 36, 508-515. doi: 10.1007/s10765-014-1823-x
- Li, D., Chen, X.-Q., Fu, P., Ma, X., Liu, H., Chen, Y., . . . Li, Y. (2014). Inclusion flotation-driven channel segregation in solidifying steels. *Nature Communications*, 5. doi: 10.1038/ncomms6572
- Liu, W. (2005). *Finite element modelling of macrosegregation and thermomechanical phenomena in solidification processes*.
- Loucif, A., Shahriari, D., Zhang, C., Jahazi, M., Lapierre-Boire, L. P., & Tremblay, R. (2016). Macrosegregation of Alloying Elements in Hot Top of Large Size High Strength Steel Ingot. *Materials Science Forum*, 879, 1176-1181. doi: 10.4028/[www.scientific.net/MSF.879.1176](http://www.scientific.net/MSF.879.1176)
- Ludwig, A., Wu, M., & Kharicha, A. (2015). On Macrosegregation. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 46, 4854-4867. doi: 10.1007/s11661-015-2959-4
- Ma, X., & Li, D. (2016). Heterogeneous strip originated from the separate enriched melt: Innate character and physical mechanism. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 98, 558-567. doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.03.056
- Netsch. Repéré à <https://www.netzsch-thermal-analysis.com/en/products-solutions/differential-scanning-calorimetry/dsc-404-f1-pegasus>
- Ni, J., & Beckermann, C. (1991). A volume-averaged two-phase model for transport phenomena during solidification. *Metallurgical Transactions B*, 22, 349-361. doi: 10.1007/BF02651234



- Pickering, E. J. (2013). Macrosegregation in Steel Ingots: The Applicability of Modelling and Characterisation Techniques. *ISIJ International*, 53, 935-949. doi: 10.2355/isijinternational.53.935
- Pickering, E. J., & Bhadeshia, H. K. D. H. (2014). The Consequences of Macroscopic Segregation on the Transformation Behavior of a Pressure-Vessel Steel. *Journal of Pressure Vessel Technology*, 136, 031403. doi: 10.1115/1.4026448
- Pickering, E. J., Chesman, C., Al-Bermani, S., Holland, M., Davies, P., & Talamantes-Silva, J. (2015). A Comprehensive Case Study of Macrosegregation in a Steel Ingot. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 46, 1860-1874. doi: 10.1007/s11663-015-0386-y
- Pierer, R., & Bernhard, C. (2008). On the influence of carbon on secondary dendrite arm spacing in steel. *Journal of Materials Science*, 43, 6938-6943. doi: 10.1007/s10853-008-2985-3
- Reinhart, G., Nguyen-Thi, H., Billia, B., & Gastaldi, J. (2009). Dynamique de formation de la microstructure de solidification d'alliages métalliques: caractérisation par imagerie X synchrotron. 215.
- Rutskii, D. V., Gamanyuk, S. B., Zyuban, N. A., Petrova, V. F., & Palatkina, L. V. (2017). Effect of liquid–solid pouring on the as-cast structure and the distribution of nonmetallic inclusions in a 24.2-t steel 38KhN3MFA ingot. *Russian Metallurgy (Metally)*, 2017, 376-383. doi: 10.1134/S0036029517050093
- Sawada, T., Suzuki, S., & Kajikawa, K. (2016). A numerical analysis of inverted V-segregation and its dependency on alloy properties. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 143, 012030. doi: 10.1088/1757-899X/143/1/012030
- Senk, D., Engl, B., Siemon, O., & Stebner, G. (1999). Investigation of solidification and microsegregation of near-net-shape cast carbon steel. *Steel Research*, 70, 368-372. doi: 10.1002/srin.199905655
- Thermosciencific. (2010). *Analysis of Iron and Steel by Optical Emission*.
- Transvalor. (2016). *Thercast 8.2 - User manual*.
- Tu, W., Shen, H., & Liu, B. (2014). Two-Phase Modeling of Macrosegregation in a 231 t Steel Ingot. *ISIJ International*, 54, 351-355. doi: 10.2355/isijinternational.54.351
- Wang, L., He, X. Y., Peng, Q., Yang, R., & Zhai, Q. J. (2010). Effect of Cooling Rate and Si Content on Solidification Characteristics of Silicon Steel during Near-Rapid Solidification. *Advanced Materials Research*, 146-147, 1247-1251. doi: 10.4028/[www.scientific.net/AMR.146-147.1247](http://www.scientific.net/AMR.146-147.1247)

- Weisgerber, B., Hecht, M., & Harste, K. (1999). Investigations of the solidification structure of continuously cast slabs. *Steel Research*, 70, 403-411. doi: 10.1002/srin.199905659
- Won, Y.-M., & Thomas, B. G. (2001). Simple model of microsegregation during solidification of steels. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 32, 1755-1767. doi: 10.1007/s11661-001-0152-4
- Wu, M., Fjeld, A., & Ludwig, A. (2010). Modelling mixed columnar-equiaxed solidification with melt convection and grain sedimentation – Part I: Model description. *Computational Materials Science*, 50, 32-42. doi: 10.1016/j.commatsci.2010.07.005
- Wu, M., Li, J., Kharicha, A., & Ludwig, A. (2013). Using a three-phase mixed columnar-equiaxed solidification model to study macrosegregation in ingot castings : perspectives and limitations.
- Wu, M., Zheng, Y., Kharicha, A., & Ludwig, A. (2016). Numerical analysis of macrosegregation in vertically solidified Pb-Sn test castings – Part I: Columnar solidification. *Computational Materials Science*, 124, 444-455. doi: 10.1016/j.commatsci.2016.07.017
- Zhang, C., Shahriari, D., Loucif, A., Jahazi, M., Lapierre-Boire, L. P., & Tremblay, R. (2017). Effect of Thermo-Physical Properties on Solidification Behavior of Large Size High Strength Steel Ingots. 5.